

# BEST AVAILABLE COPY

⑩ 日本国特許庁 (JP)

⑪ 特許出願公表

⑫ 公表特許公報 (A)

平3-502114

⑬ Int.Cl.<sup>3</sup>  
C 10 M 133/16  
133/40  
141/08

識別記号

府内整理番号  
8217-4H

※

審査請求  
未請求  
予備審査請求  
未請求

部門(区分) 3 (3)

⑭ 公表 平成3年(1991)5月16日

(全 51 頁)

⑮ 発明の名称 動力伝達液に使用するアミド含有の摩擦改質剤

⑯ 特 願 平1-511324

⑯ 翻訳文提出日 平2(1990)6月22日

⑯ ⑯ 出 願 平1(1989)10月24日

⑯ 国際出願 PCT/US89/04795

⑯ 国際公開番号 WO90/04625

⑯ 国際公開日 平2(1990)5月3日

優先権主張 ⑮ 1988年10月24日 ⑯ 米国(US) ⑯ 261,640

⑰ 発明者 チャンドラ, ジョン アール アメリカ合衆国 08837 ニュージャージー, エディソン, オハーラ ストリート 22

⑰ 発明者 グティエレス, アントニオ アメリカ合衆国 08619 ニュージャージー, マーサビル, タールヒールズ ロード 22

⑰ 出願人 エクソン ケミカル パテンツ アメリカ合衆国 07036 ニュージャージー, リンデン, イーストインコーポレイテッド リンデン アベニュー 1900

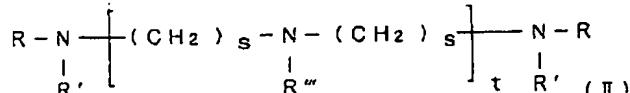
⑰ 代理人 弁理士 倉内 基弘 外1名

⑰ 指定国 A T(広域特許), A U, B E(広域特許), B R, C H(広域特許), D E(広域特許), F R(広域特許), G B(広域特許), I T(広域特許), J P, K R, L U(広域特許), N L(広域特許), S E(広域特許)

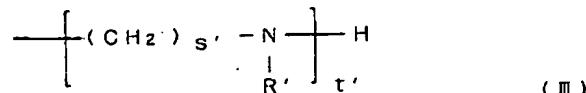
最終頁に続く

## 請求の範囲

## 4. 前記アミンが一般式:



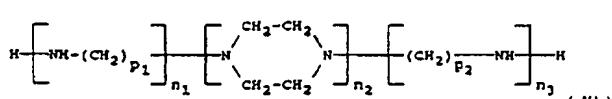
(式中、R、R'、R''及びR'''は独立して水素: C<sub>1</sub> ~ C<sub>2</sub>、直鎖若しくは分枝鎖アルキル基: C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub>アルコキシ C<sub>2</sub> ~ C<sub>6</sub>アルキレン基: C<sub>2</sub> ~ C<sub>12</sub>ヒドロキシアミノアルキレン基: 及び C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub>アルキルアミノ C<sub>2</sub> ~ C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され; R'''はさらに、式:



の成分で構成することもでき、ここでR'は上記の意味の有し、s及びs'は同一若しくは異なる2~6の数値とすることができ、t及びt'は同一若しくは異なるものとすることができるかつ0~10の数値であり、ただし0は少なくとも1であり、tとt'との合計は15以下であり、前記アミンにおける窒素原子の総数は3~約15であり、R、R'、R''及びR'''の性質は請求の範囲第1項

1. (a) 潤滑油と、  
(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質剤と  
からなり、前記イミダゾールフリーのアミド含有反応生成物は、約120~約250°Cの温度にて(1)全部で約2~約60個の炭素原子と少なくとも3個~約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10~約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体1モル当たり約2~約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択される  
ことを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。
2. 前記脂肪酸が全部で約12~約24個の炭素原子を有する請求の範囲第1項記載の潤滑油組成物。
3. 前記脂肪酸が全部で約16~約21個の炭素原子を有する請求の範囲第2項記載の潤滑油組成物。

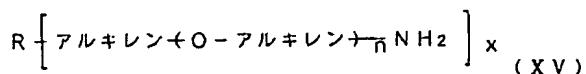
- 記載の第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される】
- の1つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第1項～第3項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
5. 前記アミンが、平均して1分子当たり約5～7個の窒素原子を有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第1項～第3項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
6. 前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンベンタミン、ジ-(1,2-ブロビレン)トリアミン、ジ-(1,3-ブロビレン)トリアミン及びN,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第1項記載の潤滑油組成物。
7. 前記アミンが、一般式：



【式中、 $p_1$  及び  $p_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～4の整数であり、かつ  $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～3の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  との合計は少なくとも2である】

を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第1項記

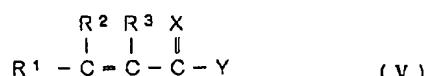
- 載の潤滑油組成物。
8. 前記アミンが、式：



【式中、 $x$  は約1～40の数値を有し、ただし全員の合計は約3～約70であり、さらにRは10個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここでR基における置換基の個数は3～6の数であるXの数値により示される】

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第1項記載の潤滑油組成物。

9. 前記アミンが、少なくとも1種のポリアミンと、式：



【式中、Xは硫黄若しくは酸素であり、Yは-OR<sup>4</sup>、-SR<sup>4</sup>若しくは-NR<sup>4</sup>(R<sup>5</sup>)であり、さらにR<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換のC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>ヒドロカルビルである】

のα、β-不飽和化合物とのアミドーアミン反応生成物である請求の範囲第1項記載の潤滑油組成物。

10. 前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪酸がイソステアリン酸である請求の範囲第1項記載

#### の潤滑油組成物。

11. (a) 潤滑油と、(b) 実質的にイミダゾールフリーの化合物の摩擦改質剤とからなり、前記イミダゾールフリーの化合物はC<sub>10</sub>～C<sub>30</sub>脂肪族モノ酸とポリアミンとの反応させて生成され、ここで約2～約10モル当量の前記脂肪族モノ酸を前記ポリアミンの1モル当たりに反応させ、さらに前記ポリアミンは3～約15個の窒素原子と全部で約2～約60個の炭素原子とを有し、前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択され、前記ポリアミンは少なくとも1個の第一アミン基と少なくとも2個の追加第一若しくは第二アミン基とを有することを特徴とする動力伝達液。

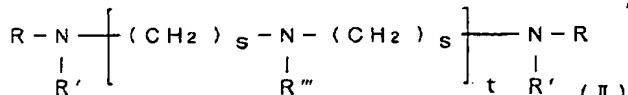
12. 約2.5～約7モル当量の前記脂肪酸を前記ポリアミンの1モル当たりに反応させた請求の範囲第11項記載の動力伝達液。

13. 約3～約5モル当量の前記脂肪酸を前記ポリアミンの1モル当たりに反応させた請求の範囲第11項記載の動力伝達液。

14. 前記脂肪酸が約12～約24個の炭素原子を有する請求の範囲第11項～第13項のいずれか一項に記載の動力伝達液。

15. 前記脂肪酸が約16～約21個の炭素原子を有する請求の範囲第11項～第13項のいずれか一項に記載の動力伝達液。

16. 前記アミンが、一般式：



【式中、R、R'、R''及びR'''は独立して水素；C<sub>1</sub>～C<sub>25</sub>の直鎖若しくは分枝鎖アルキル基；C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシC<sub>2</sub>～C<sub>8</sub>アルキレン基；C<sub>2</sub>～C<sub>12</sub>ヒドロキシアミノアルキレン基；及びC<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノC<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され；R'''はさらに式：



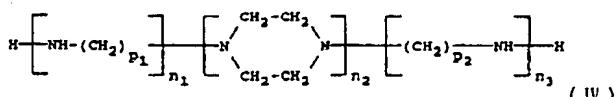
の成分で構成することもでき、ここでR'は上記の意味の有し、s及びs'は同一若しくは異なる2～6の数値とすることができる、t及びt'は同一若しくは異なる0～10の数値とできることができる、ただし tは少なくとも1であり、tとt'の合計は15以下であり、前記アミンにおける窒素原子の总数は3～約15であり、さらにR、R'、R''及びR'''の性質は請求の範囲第11項記載の

特表平3-502114 (3)

第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される] の1つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第11項～第13項のいずれか一項に記載の動力伝達液。

17. 前記アミンが、平均して約5～7個の窒素原子を1分子当たりに有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第11項記載の動力伝達液。
18. 前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンベンタミン、ジ-(1,2-プロピレン)トリアミン、ジ-(1,3-プロピレン)トリアミン及びN,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第13項記載の動力伝達液。

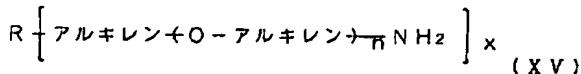
19. 前記アミンが、一般式：



[式中、 $p_1$  及び  $p_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～4の整数であり、かつ  $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～3の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  との合計は少なくとも2である]

を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第11項記載の動力伝達液。

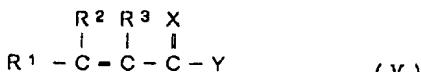
20. 前記アミンが式：



[式中、 $O$  は約1～40の数値を有し、ただし全  $O$  の合計は約3～約70であり、さらに  $R$  は10個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここで  $R$  基における置換基の個数は3～6の数である  $x$  の数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第11項記載の動力伝達液。

21. 前記アミンが少なくとも1種のポリアミンと、式：



[式中、 $X$  は硫黄若しくは酸素であり、 $Y$  は $-OR^4$ 、 $-SR^4$  若しくは $-NR^4$  ( $R^5$ ) であり、さらに  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  及び  $R^5$  は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換の  $C_1$ ～ $C_{20}$  ヒドロカルビルである]

の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和化合物とのアミドーアミン反応生成物である請求の範囲第11項記載の動力伝達液。

22. 前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪酸がイソステアリン酸である請求の範囲第13項記載の動力伝達液。

23. 前記動力伝達液が自動車トランスマッション液である請求の範囲第11、12、13、17、18、19、20、21又は22項記載の動力伝達液。

24. 前記動力伝達液が自動車トランスマッション液である請求の範囲第15項記載の動力伝達液。

25. 前記動力伝達液が自動車トランスマッション液である請求の範囲第16項記載の動力伝達液。

26. 前記摩擦改質化合物(b)が前記液体中に約0.001～約0.5重量%の量で存在する請求の範囲第11項～第13項のいずれか一項に記載の動力伝達液。

27. 前記摩擦改質化合物(b)が前記液体中に約0.001～約0.5重量%の量で存在する請求の範囲第23項記載の動力伝達液。

28. 前記摩擦改質化合物(b)が前記液体中に約0.001～約0.5重量%の量で存在する請求の範囲第15項記載の動力伝達液。

29. 前記摩摩擦改質化合物(b)が前記液体中に約0.001～約0.5重量%の量で存在する請求の範囲第16項記載の動力伝達液。

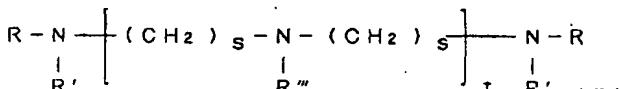
30. 約75種類までの種のベース油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の実質的にイミダゾールフリーの摩擦改質反応生成物とからなり、前記摩摩擦改質反応生成物は、約120～約250°Cの温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と3～約15個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の

窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪族モノ酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする添加剤濃厚物。

31. 前記脂肪酸が全部で約12～約24個の炭素原子を有する請求の範囲第30項記載の添加剤濃厚物。

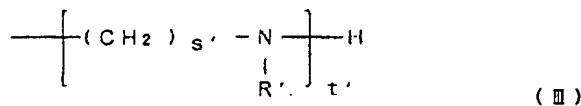
32. 前記脂肪酸が全部で約16～約21個の炭素原子を有する請求の範囲第30項記載の添加剤濃厚物。

33. 前記アミンが、一般式：



[式中、 $R$ 、 $R'$ 、 $R''$  及び  $R'''$  は独立して水素： $C_1$ ～ $C_{25}$  直鎖若しくは分枝鎖アルキル基； $C_1$ ～ $C_{12}$  アルコキシ  $C_2$ ～ $C_6$  アルキレン基； $C_2$ ～ $C_{12}$  ヒドロキシアミノアルキレン基；及び  $C_1$ ～ $C_{12}$  アルキルアミノ  $C_2$ ～ $C_6$  アルキレン基よりなる群から選択され； $R'''$

はさらに式：

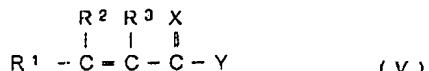


の成分で構成することもでき、ここで  $\text{R}'$  は上記の意味の有し、 $s'$  及び  $t'$  は同一若しくは異なる 2~6 の数値とすることができ、 $t$  及び  $t'$  は同一若しくは異なるものとすることができかつ 0~10 の数値であり、ただしでは少なくとも 1 であり、 $t$  と  $t'$  の合計は 15 以下であり、前記アミンにおける窒素原子の总数は 3~約 15 であり、 $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び  $\text{R}'''$  の性質は請求の範囲第 30 項記載の第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される】

の 1 つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

34. 前記アミンが、平均して 1 分子当たり約 5~7 個の窒素原子を有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

35. 前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンベンタミン、ジ-(1,2-プロピレン)トリアミン、ジ-(1,3-プロピレン)トリアミン及び N,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。



[式中、X は硫黄若しくは酸素であり、Y は  $-\text{OR}^4$ 、 $-\text{SR}^4$  若しくは  $-\text{NR}^4$  ( $\text{R}^5$ ) であり、さらに  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$  及び  $\text{R}^5$  は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換の  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_{20}$  ヒドロカルビルである]

の  $\alpha$ 、 $\beta$ ~不饱和化合物とのアミドアミン反応生成物である請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

39. 前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪酸がイソステアリン酸である請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

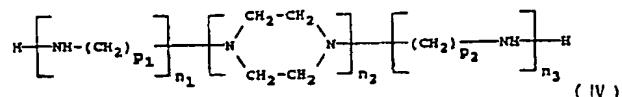
40. 動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質を改良するに際し、前記潤滑油と摩擦改質量の添加剤粗成物とを混合することからなり、前記添加剤粗成物は、

(a) 潤滑油と、

(b) 實質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質剤と

からなり、前記イミダゾールフリーのアミド含有反応生成物は約 120~約 250°C の温度にて (1) 全部で約 2~約 60 個の窒素原子と少なくとも 3 個~約 15 個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも 2 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2) 約

### 36. 前記アミンが、一般式：



[式中、 $p_1$  及び  $p_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ 1~4 の整数であり、かつ  $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ 1~3 の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  の合計は少なくとも 2 である]

を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

### 37. 前記アミンが、式：



[式中、 $x$  は約 1~40 の数値を有し、ただし全  $x$  の合計は約 3~約 70 であり、さらに  $\text{R}$  は 10 個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここで  $\text{R}$  基における置換基の個数は 3~6 の数である  $x$  の数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第 30 項記載の添加剤濃厚物。

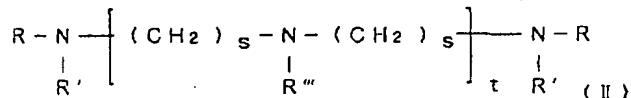
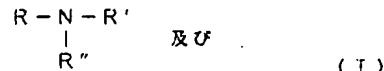
### 38. 前記アミンが、少なくとも 1 種のポリアミンと式：

10~約 30 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体 1 モル当たり約 2~約 10 モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする潤滑油の摩擦改質の改良方法。

41. 前記動力伝達液における前記アミド反応生成物の濃度が約 0.001~約 0.5 重量% である請求の範囲第 40 項記載の方法。

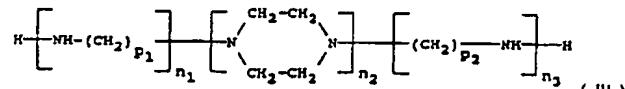
42. 前記脂肪酸が全部で約 12~約 24 個の炭素原子を有する請求の範囲第 40 項記載の方法。

### 43. 前記アミンが、一般式：



[式中、 $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び  $\text{R}$  は独立して水素:  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_{25}$  直鎖若しくは分枝鎖アルキル基;  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_{12}$  アルコキシ  $\text{C}_2$ ~ $\text{C}_6$  アルキレン基;  $\text{C}_2$ ~ $\text{C}_{12}$  ヒドロキシアミノアルキレン基; 及び  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_{12}$  アルキルアミノ  $\text{C}_2$ ~ $\text{C}_6$  アルキレン基よりなる群から選択され;  $\text{R}''$  はさらに式:

## 46. 前記アミンが、一般式：



[式中、 $p_1$  及び  $p_2$  は同一若しくは異なるものであつてそれぞれ 1~4 の整数であり、かつ  $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであつてそれぞれ 1~3 の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  の合計は少なくとも 2 である]

を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第40項記載の方法。

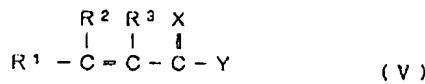
## 47. 前記アミンが、式：



[式中、 $x$  は約 1~40 の数値を有し、ただし全  $x$  の合計は約 3~約 70 であり、さらに R は 10 個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここで R 基における置換基の個数は 3~6 の数である  $x$  の数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第40項記載の方法。

## 48. 前記アミンが、少なくとも 1 種のポリアミンと式：



[式中、X は硫黄若しくは酸素であり、Y は  $-\text{OR}^4$ 、 $-\text{SR}^4$  若しくは  $-\text{NR}^4$  ( $\text{R}^5$ ) であり、さらに  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$  及び  $\text{R}^5$  は同一若しくは異なるものであつて水素又は置換若しくは未置換の  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_{20}$  ヒドロカルビルである]

の  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和化合物とのアミドーアミン反応生成物である請求の範囲第40項記載の方法。

49. 前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪酸がイソステアリン酸である請求の範囲第40項記載の方法。

50. 前記アミド反応生成物が約 2.5~約 7 モル当量の脂肪酸を前記アミン反応体の 1 モル当量当たりに含有する請求の範囲第40項記載の方法。

51. 前記アミド反応生成物が約 3~約 5 モル当量の脂肪酸を前記アミン反応体の 1 モル当量当たりに含有する請求の範囲第40項記載の方法。

52. 少なくとも 1 種の成分-1 アミンと少なくとも 1 種の成分-2 類との反応から誘導されるアミン塩類成物において：

A. 成分-1 は

(i) 全部で約 2~約 60 個の炭素原子と少なくとも 3 個~約 15 個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なく

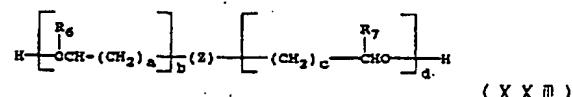
とも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも 2 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約 10~約 30 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも 1 種の反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体 A-1 アミンの少なくとも 1 個のアミン基を反応体 A-ii 酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b) 得られる成分-1 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない、

B. 成分-2 は：

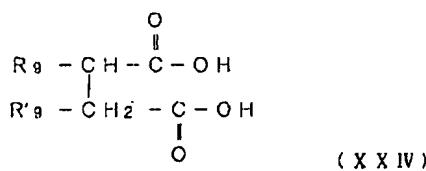
(i) 構造式：



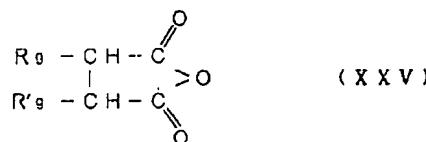
[式中、 $\text{R}_6$  及び  $\text{R}_7$  はそれぞれ独立して水素又は  $\text{C}_1$ ~ $\text{C}_6$  アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1~約 3 の範囲で変化しうる数値を示し；Z は  $-\text{S}-$ 、 $-\text{S}-\text{S}-$ 、 $-\text{O}-$  及び  $>\text{NR}_6$  から選択される結合基を示し、ここで  $\text{R}_6$  は水素、 $\text{C}_1$ ~約  $\text{C}_4$  アルキル若しくは  $\text{C}_1$ ~約  $\text{C}_4$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

特表平3-502114 (6)

(ii) アルコール 1 モル当たり約 1 ~ 約 2 モルの各構造式：



及び



[式中、 $\text{R}'_9$  は水素、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  脂肪族ヒドロカルビルであり、 $\text{R}_9$  は約 12 ~ 約 50 個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体 B-1 の少なくとも 1 個のヒドロキシ基を反応体 B-ii の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b) 得られる成分-2 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる

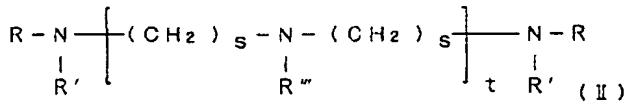
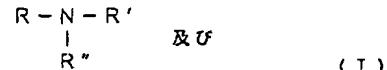
ことを特徴とするアミン塩鉱成物。

53. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約 12 ~

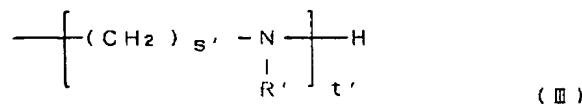
約 24 個炭素原子を有し、かつ成分-2 において  $\text{R}'_9$  が水素である請求の範囲第 5-2 項記載の塩。

54. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約 16 ~ 約 21 個の炭素原子を有する請求の範囲第 5-3 項記載の塩。

55. 成分-1において前記アミンが、一般式：



[式中、 $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び  $\text{R}''$  は独立して水素： $\text{C}_1 \sim \text{C}_{25}$  の直鎖若しくは分校鎖アルキル基： $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$  アルコキシ  $\text{C}_2 \sim \text{C}_6$  アルキレン基； $\text{C}_2 \sim \text{C}_{12}$  アミノアルキレン基；及び  $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$  アルキルアミノ  $\text{C}_2 \sim \text{C}_6$  アルキレン基よりなる群から選択され； $\text{R}''$  はさらに式：



の成分で構成することができ、ここで  $\text{R}'$  は上記の意味の有し、 $s$  及び  $s'$  は同一若しくは異なる 2 ~ 6 の数値とすることができます、 $t$  及び  $t'$  は同一若しくは異なる 0

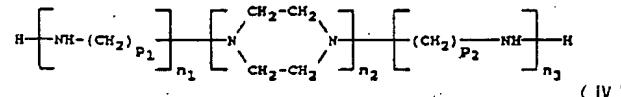
~ 10 の数値とすることができます、ただしには少なくとも 1 であり、 $s + s'$  の合計は 15 以下であり、前記アミンにおける窒素原子の总数は少なくとも 3 であり、さらに  $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び  $\text{R}''$  の性質は請求の範囲第 5-2 項記載の第一及び第二アミノ基の必要性を与えるよう選択される]

の 1 つを有する脂肪族酸和アミンである請求の範囲第 5-4 項記載の塩。

56. 成分-1において前記アミンが、平均して約 5 ~ 7 個の窒素原子を 1 分子当たりに有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第 5-3 項記載の塩。

57. 成分-1において前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジ-(1, 2-アロビレン)トリアミン、ジ-(1, 3-アロビレン)トリアミン及び N, N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第 5-2 項記載の塩。

58. 成分-1において前記アミンが、一般式：

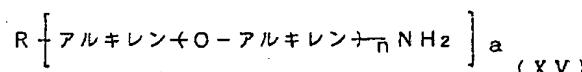


[式中、 $\text{p}_1$  及び  $\text{p}_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ 1 ~ 4 の整数であり、かつ  $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ 1 ~ 3

の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  の合計は少なくとも 3 である]

を有する複環式窒素化合物からなる請求の範囲第 5-2 項記載の塩。

59. 前記アミンが、式：



[式中、 $\text{R}$  は約 1 ~ 40 の数値を有し、ただし全  $\text{R}$  の合計は約 3 ~ 約 70 であり、さらに  $\text{R}$  は 10 個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここで  $\text{R}$  基における置換基の個数は 3 ~ 6 の数である  $a$  の数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第 5-2 項記載の塩。

60. 成分-1において前記アミンが、少なくとも 1 種のポリアミンと式：



[式中、 $\text{X}$  は硫黄若しくは酸素であり、 $\text{Y}$  は  $-\text{OR}^4$ 、 $-\text{SR}^4$  若しくは  $-\text{NR}^4$  ( $\text{R}^5$ ) であり、さらに  $\text{R}^1$ 、 $\text{R}^2$ 、 $\text{R}^3$ 、 $\text{R}^4$  及び  $\text{R}^5$  は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換の  $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$  ヒドロカルビルである]

特表平3-502114 (7)

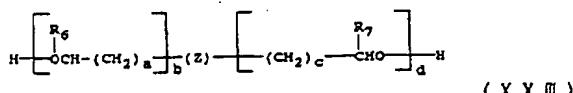
- の $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和化合物とのアミドーアミン反応生成物である請求の範囲第52項記載の塩。
61. 成分-1において前記アミンがテトラエチレンペニタミンであり、前記脂肪族モノ酸がイソステアリン酸、ステアリン酸及びその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第53項記載の塩。
62. 成分-2の式(XXII)において(a)、(b)、(c)及び(d)が1であり、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルであり、さらに式XXIV及びXXVにおいてR'<sub>9</sub>が水素であり、R<sub>8</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基である請求の範囲第52項記載の塩。
63. 成分-2の式XXIIIにおけるZが>NR<sub>8</sub>であり、かつR<sub>8</sub>が-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-OHである請求の範囲第52項記載の塩。
64. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR'<sub>9</sub>が水素であり、R<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>22</sub>直鎖脂肪族基であり、さらに式XXIIIにおいてR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルである請求の範囲第52項記載の塩。
65. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR'<sub>9</sub>が水素であり、R<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基であり、さらに式XXIIIにおいてR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が水素である請求の範囲第52項記載の塩。
66. 成分-2の式XXIIIにおいて(a)及び(c)が同一であり、(b)及び(d)が同一であり、さらにR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が同一である請求の範囲第52項記載の塩。

も3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と  
を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b)得られる成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない、

(d) 成分-2は

(i) 構造式：



[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し；Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR<sub>8</sub>から選択される結合基を示し、ここでR<sub>8</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロカルビル基を示すことができる]

67. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR'<sub>9</sub>が水素であり、R<sub>9</sub>がオクタデセニルであり、さらに式XXIIIにより示されるアルコールがチオービスエタノールである請求の範囲第52項記載の塩。

68. 成分-1が、ポリアミン反応体A-1の1モル当たり2～約10モル当量のモノ酸反応体A-IIを用いて120～250℃の温度で反応させて生成される請求の範囲第52項～第67項のいずれか一項に記載の塩。

69. 成分-1が150～200℃の反応温度にて生成される請求の範囲第52項～第67項のいずれか一項に記載の塩。

70. 塩生成反応が約20～約100℃の温度にて0.08～約4時間にわたり行なわれる請求の範囲第52項～第67項のいずれか一項に記載の塩。

71. 塩生成反応における成分-1及び成分-2反応体の量が、1.05：1～約11：1の成分-2におけるカルボキシル基と成分-1における反応性アミノ基との当量比を与えるのに充分である請求の範囲第52項～第67項のいずれか一項に記載の塩。

72. (1) 開滑油と、  
(2) 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との反応により生成される摩擦改質量のアミン塩粗成物と

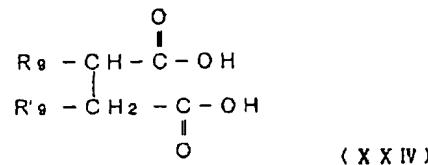
からなり、

(A) 成分-1は

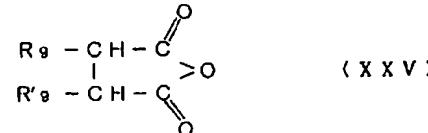
(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくと

により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当たり約1～約2モルの各構造式：



及び



[式中、R<sub>9</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)反応体B-Iの少なくとも1個のヒドロキシル基を反応体B-IIの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる  
ことを特徴とする動力伝達版として使用するのに適した獨

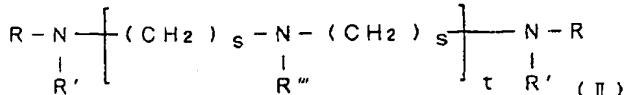
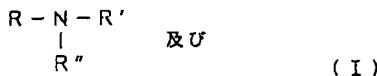
特表平3-502114 (8)

潤滑油組成物。

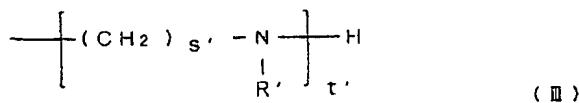
73. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約12～約24個炭素原子を有する請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

74. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約16～約21個の炭化原子を有する請求の範囲第73項記載の潤滑油組成物。

75. 成分-1において前記アミンが、一般式：

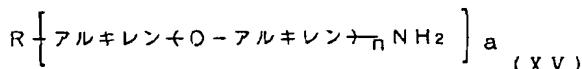


[式中、R、R'、R''及びR''は独立して水素：C<sub>1</sub>～C<sub>2</sub>～C<sub>5</sub>の直鎖若しくは分枝鎖アルキル基；C<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルコキシC<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルキレン基；C<sub>2</sub>～C<sub>12</sub>アミノアルキレン基；及びC<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルアミノC<sub>2</sub>～C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され；R''はさらに式：



てそれぞれ1～4の整数であり、かつn<sub>1</sub>、n<sub>2</sub>及びn<sub>3</sub>は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～3の整数であり、ただしn<sub>1</sub>とn<sub>3</sub>との合計は少なくとも3である]を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

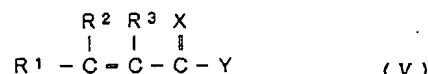
79. 前記アミンが、式：



[式中、nは約1～40の数値を有し、ただし全nの合計は約3～約70であり、さらにRは10個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここでR基における置換基の個数は3～6の数であるaの数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

80. 成分-1において前記アミンが、少なくとも1種のポリアミンと式：



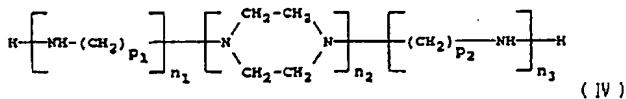
[式中、Xは硫黄若しくは酸素であり、Yは-O-R<sup>4</sup>、-S-R<sup>4</sup>若しくは-N-R<sup>4</sup>(R<sup>5</sup>)であり、さらにR<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換のC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>ヒドロ

の成分で構成することもでき、ここでR'は上記の意味の有し、S及びS'は同一若しくは異なる2～6の数値とすることができ、t及びt'は同一若しくは異なる0～10の数値とすることができ、たゞしては少なくとも1であり、tとt'との合計は15以下であり、前記アミンにおける窒素原子の総数は3～約15であり、さらにR、R'、R''及びR'''の性質は請求の範囲第72項記載の第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される]の1つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

76. 成分-1において前記アミンが、平均して約5～7個の窒素原子を1分子当たりに有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

77. 成分-1において前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジ-(1,2-プロピレン)トリアミン、ジ-(1,3-プロピレン)トリアミン及びN,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

78. 成分-1において前記アミンが、一般式：



[式中、p<sub>1</sub>及びp<sub>2</sub>は同一若しくは異なるものであつ

カルビルである]

のα、β-不饱和化合物とのアミドーアミン反応生成物である請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

81. 成分-1において前記アミンがテトラエチレンペンタミンであり、前記脂肪族モノ酸がイソステアリン酸、ステアリン酸及びその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

82. 成分-2の式(XXIII)において(a)、(b)、(c)及び(d)が1であり、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルであり、さらに式XXIV及びXXVにおいてR<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基である請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

83. 成分-2の式XXIIIにおけるZが>NR<sub>8</sub>であり、かつR<sub>8</sub>が-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-OHである請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

84. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>22</sub>直鎖脂肪族基であり、さらに式XXIIIにおいてR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルである請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

85. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基であり、かつ式XXIIIにおいてR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が水素ある請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。

86. 成分-2の式XXIIIにおいて(a)及び(c)が同一であり、(b)及び(d)が同一であり、さらにR<sub>6</sub>及

特表平3-502114 (9)

- びR<sub>7</sub>が同一である請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。
87. 成分-2の式XXIV及びXXVにおいてR<sub>8</sub>がオクタデセニルであり、式XXIIIにより示されるアルコールがチオーピスエタノールである請求の範囲第72項記載の潤滑油組成物。
88. 成分-1が、ポリアミン反応体A-iの1モルにつき2~約10モル当量のモノ酸反応体A-iiを用いて120~250°Cの温度で反応させて生成される請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
89. 成分-1が150~200°Cの反応温度にて生成される請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
90. 焼生成反応が、約20~約100°Cの温度にて0.08~約4時間にわたり行なわれる請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
91. 焼生成反応における成分-1及び成分-2反応体の量が、約1.05:1~約11:1の成分-2におけるカルボキシル基と成分-1における反応性アミノ基との当量比を与えるのに充分である請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
92. 組成物が動力伝達液として使用するのに適した請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
93. 組成物が動力伝達液として使用するのに適した請求

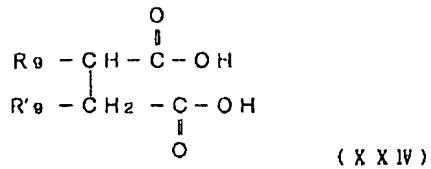
- の範囲第88項記載の潤滑油組成物。
94. 組成物が動力伝達液として使用するのに適した請求の範囲第89項記載の潤滑油組成物。
95. 組成物が動力伝達液として使用するのに適した請求の範囲第90項記載の潤滑油組成物。
96. 組成物が動力伝達液として使用するのに適した請求の範囲第91項記載の潤滑油組成物。
97. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスミッション液として使用するのに適した請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
98. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスミッション液として使用するのに適した請求の範囲第88項記載の潤滑油組成物。
99. 組成物が分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスミッション液として使用するのに適した請求の範囲第89項記載の潤滑油組成物。
100. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスミッション液として使用するのに適した請求の範囲第90項記載の潤滑油組成物。
101. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスミッション液として使用するのに適した請求の範囲第91項記載の潤滑油組成物。
102. 摩擦改質性塩組成物が前記液体中に約0.01~約3重量%の量で存在する請求の範囲第92項記載の動力伝達液。

達液。

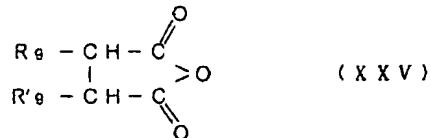
103. 摩擦改質性塩組成物が前記液体中に約0.01~約3重量%の量で存在する請求の範囲第93項記載の動力伝達液。
104. 摩擦改質性塩組成物が前記液体中に約0.01~約3重量%の量で存在する請求の範囲第94項記載の動力伝達液。
105. 摩擦改質性塩組成物が前記液体中に約0.01~約3重量%の量で存在する請求の範囲第95項記載の動力伝達液。
106. 摩擦改質性塩組成物が前記液体中に約0.01~約3重量%の量で存在する請求の範囲第96項記載の動力伝達液。
107. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25~約100重量%の請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。
108. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25~約100重量%の請求の範囲第88項記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。
109. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25~約100重量%の請求の範囲第89項記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。
110. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25~約100重量%の請求の範囲第90項記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。

111. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25~約100重量%の請求の範囲第91項記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。
112. 摩擦改質剤として請求の範囲第72項~第87項のいずれか一項に記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。
113. 摩擦改質剤として請求の範囲第88項記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。
114. 摩擦改質剤として請求の範囲第89項記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。
115. 摩擦改質剤として請求の範囲第90項記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。
116. 摩擦改質剤として請求の範囲第91項記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。
117. 摩擦改質量の少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸とからなる混合物を含み、ここで
- (A) 成分-1は  
 (i) 全部で約2~約60個の炭素原子と少なくとも3個~約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少

特表平3-502114 (10)



及び



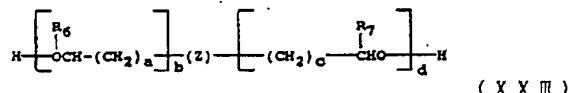
[式中、 $\text{R}'_8$  は水素、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  脂肪族ヒドロカルビルであり、 $\text{R}_8$  は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体B-i の少なくとも1個のヒドロキシル基を反応体B-ii の少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b) 得られる成分-2 反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与する  
のに充分な方式及び条件にて行なわれる  
ことを特徴とする組成物。

118. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約12～約24個炭素原子を有し、かつ成分-2において $\text{R}'_8$  が水

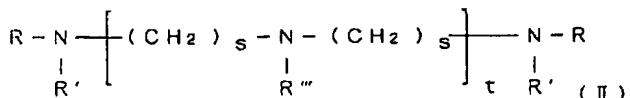
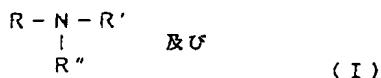
[式中、 $\text{R}_8$  及び $\text{R}_7$  はそれぞれ独立して水素又は $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び(d) はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し：Zは-S-、-S-S-、-O- 及び >NR<sub>8</sub> から選択される結合基を示し、ここで $\text{R}_8$  は水素、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$  アルキル若しくは $\text{C}_1 \sim \text{C}_4$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当たり約1～約2モルの各構造式：

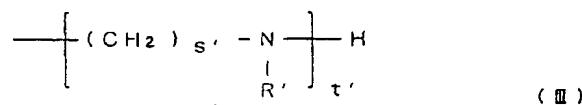


素である請求の範囲第117項記載の組成物。  
119. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が全部で約16～約21個の炭素原子を有する請求の範囲第117項記載の組成物。

120. 成分-1において前記アミンが、一般式：



[式中、 $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び $\text{R}'''$  は独立して水素： $\text{C}_1 \sim \text{C}_{25}$  の直鎖若しくは分枝鎖アルキル基： $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$  アルコキシ $\text{C}_2 \sim \text{C}_6$  アルキレン基： $\text{C}_2 \sim \text{C}_{12}$  アミノアルキレン基；及び $\text{C}_1 \sim \text{C}_{12}$  アルキルアミノ $\text{C}_2 \sim \text{C}_6$  アルキレン基よりなる群から選択され； $\text{R}''$  はさらに式：



の成分で構成することもでき、ここで $\text{R}'$  は上記の意味の有し、 $s$  及び $s'$  は同一若しくは異なる2～6の数値とすることができます、 $t$  及び $t'$  は同一若しくは異なる0

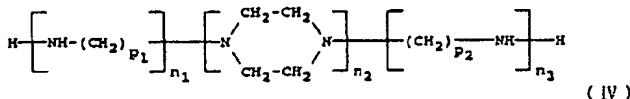
～10の数値とすることができます、ただし $t$  は少なくとも1であり、 $t+t'$  の合計は15以下であり、前記アミンにおける窒素原子の総数は少なくとも3であり、さらに $\text{R}$ 、 $\text{R}'$ 、 $\text{R}''$  及び $\text{R}'''$  の性質は請求の範囲第117項記載の第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される】

の1つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第117項記載の組成物。

121. 成分-1において前記アミンが、平均して約5～7個の窒素原子を1分子当たりに有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第120項記載の組成物。

122. 成分-1において前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンベンタミン、ジ-(1,2-プロピレン)トリアミン、ジ-(1,3-プロピレン)トリアミン及びN,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン、並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第117項記載の組成物。

123. 成分-1において前記アミンが、一般式：

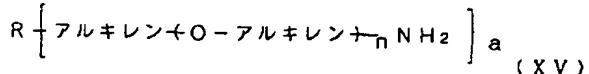


[式中、 $p_1$  及び $p_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～4の整数であり、かつ $n_1$ 、 $n_2$  及び $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1～3

の数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  の合計は少なくとも 3 である]

を有する複環式窒素化合物からなる請求の範囲第 117 項記載の組成物。

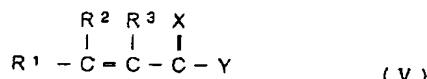
124. 前記アミンが、式：



[式中、 $n$  は約 1~40 の数値を有し、ただし全  $n$  の合計は約 3~約 70 であり、さらに  $R$  は 10 個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここで  $R$  基における置換基の個数は 3~6 の数である  $a$  の数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第 117 項記載の組成物。

125. 成分-1において前記アミンが、少なくとも 1 種のポリアミンと式：



[式中、 $X$  は硫黄若しくは酸素であり、 $Y$  は  $-OR^4$ 、 $-SR^4$  若しくは  $-NR^4$  ( $R^5$ ) であり、さらに  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 、 $R^4$  及び  $R^5$  は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換の  $C_1$ ~ $C_{20}$  ヒドロカルビルである]

132. 成分-2の式 XXIV 及び XXVにおいて  $R^9$  が水素であり、 $R^9$  がオクタデセニルであり、さらに式 XXIII により示されるアルコールがチオーピスエタノールである請求の範囲第 117 項記載の組成物。

133. 成分-1が、ポリアミン反応体 A-i の 1 モル当たり 2~約 10 モル当量のモノ酸反応体 A-ii を用いて 120~250°C の温度で反応させて生成される請求の範囲第 117 項~第 132 項のいずれか一項に記載の組成物。

134. 成分-1が、150~200°C の反応温度にて生成される請求の範囲第 117 項~第 132 項のいずれか一項に記載の組成物。

135. 前記混合物における成分-1:成分-2の重量比が約 0.2:1~約 1.2:1 である請求の範囲第 117 項~第 132 項のいずれか一項に記載の組成物。

136. 前記混合物における成分-1:成分-2の重量比が約 0.3:1~約 0.7:1 である請求の範囲第 117 項~第 132 項のいずれか一項に記載の組成物。

137. (1) 潤滑油と、

(2) 少なくとも 1 種の成分-1 アミンと少なくとも 1 種の成分-2 酸とからなる摩擦改質剤の混合物とからなり、

(A) 成分-1 は

(i) 全部で約 2~約 60 個の炭素原子と少なくとも 3 個~約 15 個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の

### 特表平3-502114 (11)

の  $\alpha$ 、 $\beta$ -不饱和化合物とのアミドアミン反応生成物である請求の範囲第 117 項記載の組成物。

126. 成分-1において前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪酸モノ酸がイソステアリン酸、ステアリン酸及びその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第 118 項記載の組成物。

127. 成分-2の式 (XXIII) において (a)、(b)、(c) 及び (d) が 1 であり、 $R_6$  及び  $R_7$  が独立して水素、メチル若しくはエチルであり、さらに式 XXIV 及び XXV において  $R^9$  が水素であり、 $R^9$  が  $C_{16}$ ~ $C_{30}$  直鎖脂肪族基である請求の範囲第 117 項記載の組成物。

128. 成分-2の式 XXIII における  $Z$  が  $>NR_8$  であり、かつ  $R_8$  が  $-(CH_2)_2-OH$  である請求の範囲第 117 項記載の組成物。

129. 成分-2の式 XXIV 及び XXV において  $R^9$  が水素であり、 $R^9$  が  $C_{18}$ ~ $C_{22}$  直鎖脂肪族基であり、さらに式 XXIII において  $R_6$  及び  $R_7$  が独立して水素、メチル若しくはエチルである請求の範囲第 117 項記載の組成物。

130. 成分-2の式 XXIV 及び XXV において  $R^9$  が水素であり、 $R^9$  が  $C_{18}$ ~ $C_{30}$  直鎖脂肪族基であり、さらに式 XXIII において  $R_6$  及び  $R_7$  が水素ある請求の範囲第 117 項記載の組成物。

131. 成分-2の式 XXIII において (a) 及び (c) が同一であり (b) 及び (d) が同一であり、さらに  $R_6$  及び  $R_7$  が同一である請求の範囲第 117 項記載の組成物。

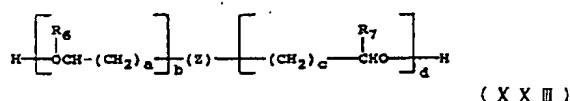
窒素原子の少なくとも 2 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約 10~約 30 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも 1 種の反応生成物であり、前記反応は反応体 A-i アミンの少なくとも 1 個のアミン基を反応体 A-ii 酸の酸基と反応させてアミドを生成させるのに充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2 は

(i) 構造式：



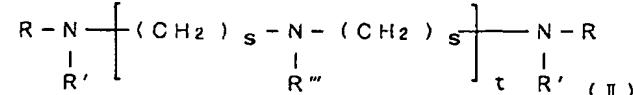
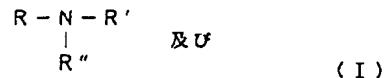
[式中、 $R_6$  及び  $R_7$  はそれぞれ独立して水素又は  $C_1$ ~ $C_6$  アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1~約 3 の範囲で変化しうる数値を示し； $Z$  は  $-S-$ 、 $-S-S-$ 、 $-O-$  及び  $>NR_8$  から選択される結合基を示し、ここで  $R_8$  は水素、 $C_1$ ~ $C_4$  アルキル若しくは  $C_1$ ~ $C_4$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

(ii) アルコール 1 モル当たり約 1~約 2 モルの各構造式：

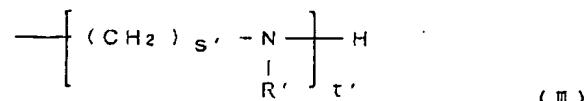
特表平3-502114 (12)

16~約21個の炭素原子を有する請求の範囲第138項記載の潤滑油組成物。

140. 成分-1において前記アミンが、一般式：

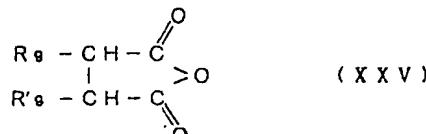
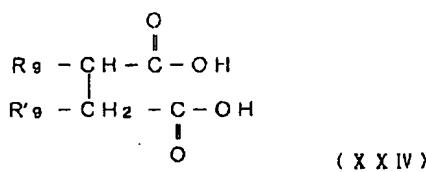


[式中、R、R'、R''及びR''は独立して水素:C<sub>1</sub>~C<sub>25</sub>の直鎖若しくは分枝鎖アルキル基; C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルコキシC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基; C<sub>2</sub>~C<sub>12</sub>アミノアルキレン基; 及びC<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルアミノC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され; R''はさらに式:



の成分で構成することもでき、ここでR'は上記の意味の有し、s及びs'は同一若しくは異なる2~6の数値とすることができ、t及びt'は同一若しくは異なる0~10の数値とすることができ、ただしtは少なくとも1であり、tとt'との合計は15以下であり、前記アミン

及び



[式中、R<sub>9</sub>は約12~約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と

を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は反応体B-1の少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体B-iiの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させるのに充分な方式及び条件にて行なわれることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

138. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が、全部で約12~約24個炭素原子を有する請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

139. 成分-1において前記脂肪族モノ酸が、全部で約

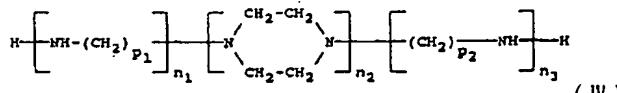
における窒素原子の总数は3~約15であり、さらにR、R'、R''及びR''の性質は請求の範囲第137項記載の第一及び第二アミノ基の必要数を与えるよう選択される]

の1つを有する脂肪族飽和アミンである請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

141. 成分-1において前記アミンが、平均して約5~7個の窒素原子を1分子当たりに有するポリ(エチレンアミン)の混合物である請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

142. 成分-1において前記アミンがジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ジ-(1,2-プロピレン)トリアミン、ジ-(1,3-プロピレン)トリアミン及びN,N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン並びにその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

143. 成分-1において前記アミンが、一般式:

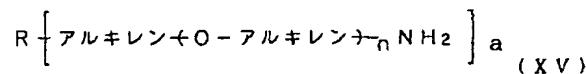


[式中、p<sub>1</sub>及びp<sub>2</sub>は同一若しくは異なるものであつてそれぞれ1~4の整数であり、かつn<sub>1</sub>、n<sub>2</sub>及びn<sub>3</sub>は同一若しくは異なるものであつてそれぞれ1~3の整数であり、ただし n<sub>1</sub>とn<sub>3</sub>との合計は少なくとも

3である]

を有する複素環式窒素化合物からなる請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

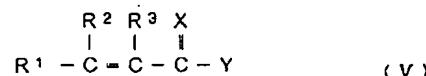
144. 前記アミンが、式:



[式中、nは約1~40の数値を有し、ただし全nの合計は約3~約70であり、さらにRは10個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここでR基における置換基の個数は3~6の数であるaの数値により示される]

を有するポリオキシアルキレンポリアミンである請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。

145. 成分-1において前記アミンが、少なくとも1種のポリアミンと式:



[式中、Xは硫黄若しくは酸素であり、Yは-OR<sup>4</sup>、-SR<sup>4</sup>若しくは-NR<sup>4</sup>(R<sup>5</sup>)であり、さらにR<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>は同一若しくは異なるものであつて水素又は置換若しくは未置換のC<sub>1</sub>~C<sub>20</sub>ヒドロカルビルである]

のα、β-不飽和化合物とのアミドーアミン反応生成物で

特表平3-502114 (13)

- ある請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
146. 成分-1において前記アミンがテトラエチレンベンタミンであり、前記脂肪族モノ酸がイソステアリン酸、ステアリン酸及びその混合物よりなる群から選択される請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
147. 成分-2の式 $X X I I$ において(a)、(b)、(c)及び(d)が1であり、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルであり、さらに式 $X X I V$ 及び $X X V$ においてR<sub>8</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基である請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
148. 成分-2の式 $X X I I$ におけるZが>NR<sub>8</sub>であり、かつR<sub>8</sub>が-(CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub>-OHである請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
149. 成分-2の式 $X X I V$ 及び $X X V$ においてR<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>22</sub>直鎖脂肪族基であり、さらに式 $X X I I$ においてR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が独立して水素、メチル若しくはエチルである請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
150. 成分-2の式 $X X I V$ 及び $X X V$ においてR<sub>9</sub>がC<sub>16</sub>～C<sub>30</sub>直鎖脂肪族基であり、かつ式 $X X I I$ においてR<sub>8</sub>及びR<sub>7</sub>が水素ある請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
151. 成分-2の式 $X X I I$ において(a)及び(c)が同一であり(b)及び(d)が同一であり、さらにR<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>が同一である請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
152. 成分-2の式 $X X I V$ 及び $X X V$ においてR<sub>9</sub>がオクタデセニルであり、式 $X X I I$ により示されるアルコールがチオービスエタノールである請求の範囲第137項記載の潤滑油組成物。
153. 成分-1が、ポリアミン反応体A-iの1モルにつき約2～約10モル当量のモノ酸反応体A-iiを用いて120～250℃の温度で反応させて生成される請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
154. 成分-1が150～200℃の反応温度にて生成される請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
155. 前記混合物における成分-1：成分-2の重量比が約0.2：1～約1.2：1である請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
156. 混合物における成分-1：成分-2の重量比が約0.3：1～約0.7：1である請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
157. 前記組成物が動力伝達液として使用するのに適する請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
158. 前記組成物が動力伝達液として使用するのに適する請求の範囲第153項記載の潤滑油組成物。
159. 前記組成物が動力伝達液として使用するのに適する請求の範囲第154項記載の潤滑油組成物。

160. 前記組成物が動力伝達液として使用するのに適する請求の範囲第155項記載の潤滑油組成物。
161. 前記組成物が動力伝達液として使用するのに適する請求の範囲第156項記載の潤滑油組成物。
162. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスマッキシヨン液として使用するに適した請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の潤滑油組成物。
163. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスマッキシヨン液として使用するに適した請求の範囲第153項記載の潤滑油組成物。
164. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスマッキシヨン液として使用するに適した請求の範囲第154項記載の潤滑油組成物。
165. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスマッキシヨン液として使用するに適した請求の範囲第155項記載の潤滑油組成物。
166. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランスマッキシヨン液として使用するに適した請求の範囲第156項記載の潤滑油組成物。
167. 摩擦改質性混合物が前記液体中に約0.01～約3重量%の量で存在する請求の範囲第157項記載の動力伝達液。
168. 摩擦改質性混合物が前記液体中に約0.01～約3重量%の量で存在する請求の範囲第158項記載の動力伝達液。

- 達液。
169. 摩擦改質性混合物が前記液体中に約0.01～約3重量%の量で存在する請求の範囲第159項記載の動力伝達液。
170. 摩擦改質性混合物が前記液体中に約0.01～約3重量%の量で存在する請求の範囲第160項記載の動力伝達液。
171. 摩擦改質性混合物が前記液体中に約0.01～約3重量%の量で存在する請求の範囲第161項記載の動力伝達液。
172. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。
173. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第153項記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。
175. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第155項記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。
176. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第156項記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。
177. 摩擦改質剤として、請求の範囲第137項～第152項のいずれか一項に記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するに適した

特表平3-502114 (14)

に適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

178. 摩擦改質剤として、請求の範囲第153項記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

179. 摩擦改質剤として、請求の範囲第154項記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

180. 摩擦改質剤として請求の範囲第155項記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

181. 摩擦改質剤として、請求の範囲第156項記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

182. (a) 潤滑油と、

(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質量と

からなり、前記反応生成物は約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体1モル当たり約2～約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、

り約2～約10モル当量の脂肪族モノ酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする添加剤濃厚物。

185. 動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質を向上させるに際し前記潤滑油と摩擦改質量の添加剤粗成物とを混合することからなり、前記添加剤粗成物は

(a) 潤滑油と、

(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質量とからなり、前記反応生成物は約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と2個～約15個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体1モル当たり約2～約10モル当量の脂肪族モノ酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする潤滑油における摩擦改質の改良方法。

186. 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との反応から誘導されるアミン塩粗成物において：

防酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油粗成物。

183. (a) 潤滑油と、

(b) 実質的にイミダゾールフリーの化合物の摩擦改質量とからなり、前記イミダゾールフリーの化合物はC<sub>10</sub>～C<sub>30</sub>脂肪族モノ酸をポリアミンと反応させて生成され、ここで約2～約10モル当量の前記脂肪族モノ酸を前記ポリアミン1モル当たりに反応させると共に、前記ポリアミンは2～約15個の窒素原子と全部で2～約60個の炭素原子とを有し、前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択され、さらに前記ポリアミンは少なくとも1個の第一アミン基と少なくとも1個の追加第一若しくは第二アミン基とを有することを特徴とする動力伝達液。

184. 約75重量%までの量のベース油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の実質的にイミダゾールフリーの摩擦改質反応生成物とからなり、前記摩擦改質反応生成物は約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と2個～約15個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体1モル当

(A) 成分-1は

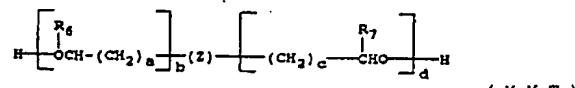
(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b)得られる成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない。

(B) 成分-2は

(i) 構造式：

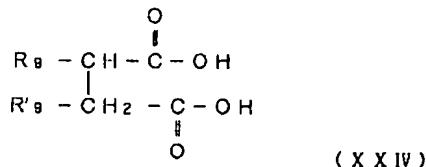


[式中、R<sub>6</sub> 及び R<sub>7</sub> はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、Zは-S-、-S-S-、-O- 及び >NR<sub>8</sub> から選択される結合基を示し、ここ

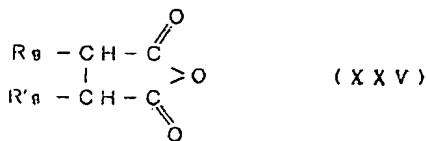
で  $R_8$  は水素、 $C_1 \sim C_4$  アルキル若しくは  $C_1 \sim C_4$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる】

により示されるアルコールと、

(ii) アルコール 1 モル当り約 1 ~ 約 2 モルの各構造式：



及び



〔式中、 $R'_8$  は水素、 $C_1 \sim C_6$  脂肪族ヒドロカルビルであり、 $R_8$  は約 12 ~ 約 50 個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である〕

により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体 B - i の少なくとも 1 個のにドロキシ基を反応体 B - ii の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエス

### 特表平3-502114 (16)

エステルを生成させると共に、(b) 得られる成分 - 2 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれることを特徴とするアミン塩粗成物。

187. (1) 潤滑油と、

(2) 少なくとも 1 種の成分 - 1 アミンと少なくとも 1 種の成分 - 2 酸との反応により生成される摩擦改質量のアミン塩粗成物とからなり、

(A) 成分 - 1 は

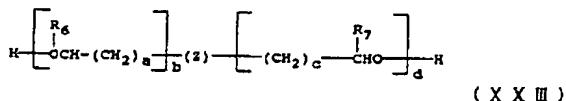
(i) 全部で約 2 ~ 約 60 個の炭素原子と少なくとも 2 個 ~ 約 15 個までの窒素原子と有し前記窒素原子の少なくとも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも 1 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約 10 ~ 約 30 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも 1 種の反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体 A - i アミンの少なくとも 1 個のアミン基を反応体 A - ii 酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b) 得られる成分 - 1 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分 - 2 は

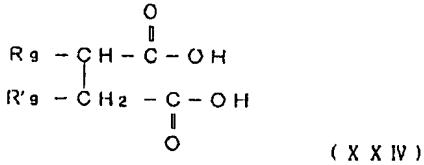
(i) 構造式：



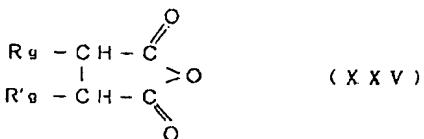
〔式中、 $R_8$  及び  $R_7$  はそれぞれ独立して水素又は  $C_1 \sim C_6$  アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1 ~ 約 3 の範囲で変化しうる数値を示し；  $Z$  は  $-S-$ 、 $-S-S-$ 、 $-O-$  及び  $>NR_8$  から選択される結合基を示し、ここで  $R_8$  は水素、 $C_1 \sim C_4$  アルキル若しくは  $C_1 \sim C_4$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる〕

により示されるアルコールと、

(ii) アルコール 1 モル当り約 1 ~ 約 2 モルの各構造式：



及び



〔式中、 $R_8$  は約 12 ~ 約 50 個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である〕

により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体 B - i の少なくとも 1 個のヒドロキシル基を反応体 B - ii の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b) 得られる成分 - 2 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油粗成物。

188. 前記摩擦改質塩粗成物が、前記液体中に約 0.01 ~ 約 3 重量 % の量で存在する請求の範囲第 187 項記載の動力伝達液。

189. 約 75 重量 %までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約 25 ~ 約 100 重量 % の請求の範囲第 187 項又は第 188 項記載の塩粗成物とからなることを特徴とする添加剤濃厚物。

190. 摩擦改質の請求の範囲第 187 項又は第 188 項記載の塩粗成物を摩擦改質剤として用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

191. 少なくとも 1 種の成分 - 1 アミンと少なくとも 1 種の成分 - 2 酸とからなる混合物の摩擦改質量を含む粗成物において：

(A) 成分 - 1 は

特表平3-502114 (16)

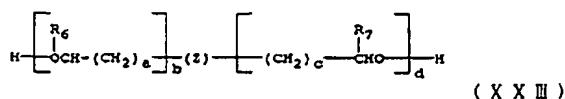
(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させるのに充分な方式及び条件にて行ない、

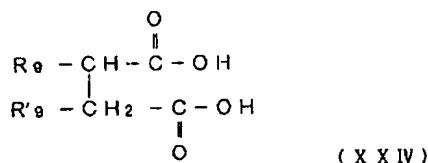
(B) 成分-2は

(i) 構造式：

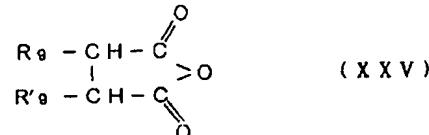


[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し；Zは-S-、-S-S-、-O-及び>N R<sub>8</sub>から選択される結合基を示し、ここでR<sub>8</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造式：



及び



[式中、R'<sub>9</sub>は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>脂肪族コドロカルビルであり、R<sub>9</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-iの少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体A-iiの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる  
ことを特徴とする組成物。

192. 混合物における成分-1：成分-2の重量比が約0.2：1～約1.2：1である請求の範囲第191項記載の組成物。

193. 混合物における成分-1：成分-2の重量比が約0.3：1～約0.7：1である請求の範囲第191項記載の組成物。

194. (1) 滑滑油と、

(2) 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸とからなる摩擦改質型の混合物とかなり、

(A) 成分-1は

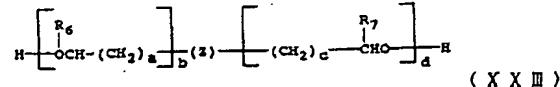
(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させるのに充分な方式及び条件にて行ない、

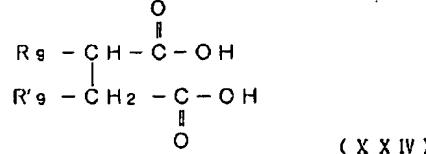
(B) 成分-2は

(i) 構造式：

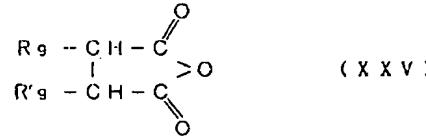


[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し；Zは-S-、-S-S-、-O-及び>N R<sub>8</sub>から選択される結合基を示し、ここでR<sub>8</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造式：



及び



[式中、 $R_9$  は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物と

を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は反応体B-ⅰの少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体B-ⅱの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させるのに充分な方式及び条件にて行なわれることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

195. 組成物が、分散剤及び耐摩耗性添加剤を含ませることにより自動車トランミッション液として使用するに適した請求の範囲第194項記載の潤滑油組成物。

196. 約75重量%までの量の潤滑油と、懸濁物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第194項記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。

197. 摩擦改質剤として請求の範囲第194項記載の混合物の摩擦改質剤を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

198. 実質的にイミダゾリンフリーである請求の範囲第52項記載の塩組成物。

199. 混合物が実質的にイミダゾリンフリーである請求の範囲第117項記載の組成物。

### 動力伝達液に使用するアミド含有の摩擦改質剤

#### 発明の背景

本発明は、たとえば動力伝達液、特に自動車伝達液(ATF)を包含する潤滑油のような油性組成物につき摩擦改質添加剤として有用である或る種の炭化水素可溶性若しくは分散性のアミド反応生成物(本明細書では成分-1と称する)及び混合物、及び(又は)成分-1と或る種の酸/エステル(この酸/エステルを本明細書では成分-2と称する)との酸アミン塩、並びにこれらを含有する油性組成物に関するものである。

周知のように、互いに接触する2個の運動表面を潤滑し、或いは摩擦を防止すると共に連続運動を確保するよう保護せねばならない特に境界潤滑条件下に置かれる場合が多く存在する。2個の擦れ合う表面間の摩擦を改質しようとするが必ずしも最小化させないような他の場合も存在する。2個の表面間の摩擦を制御することにより、一方の表面から他方の表面まで移行するエネルギーも制御される。

たとえば自動車伝達液として使用するに適した或る種の潤滑油組成物に付与しようとする特殊な性質は、液体の摩擦特性である。これらの性質は自動車トランミッション液(ATF)を他の潤滑剤から区別し、実際に ATF の種類間

をも区別する。この種の特徴的性質は、トランミッション製造業者及び液体製造業者の両者により永年にわたり多くの関心を集めている。この関心は、ATFの摩擦要求が独特でありかつトランミッション及びクラッチの設計に依存すると共に、用いるクラッチ板材料の種類にも依存するという事実から生ずる。

同じく周知されているように、潤滑剤の摩擦特性は、適する添加剤の添加により種々異なる成功率で調節することができる。

摩擦改質剤として分類しうる多くの公知添加剤も存在するが、これら添加剤の多くは種々異なる物理的若しくは化学的方式で作用し、しばしば他の添加剤、たとえば潤滑を受けるべき運動金属部品の表面に対する摩耗防止添加剤と競合することも知られている。したがって、適合性及び効果を確保すべく、これら添加剤を選択する際に相当な注意を払わねばならない。

ATF摩擦を測定するためトランミッション製造業者により各種の試験が設計されている。これら試験の目的は、特定のトランミッション設計の要求に対するATF添加剤の性能及び各種の道路条件下におけるトランミッション耐久性と円滑なシフト操作とを付与する能力を評価することである。

模擬トランミッション操作条件の下で摩擦改質を評価する1つの方法は、SAE No.2の摩擦装置である。この試験においては、試験クラッチパックと液体とを入れた試験ヘッド

を、惰力ディスクを備えた電動モータに装着する。摩擦機(試験すべき液体を充填)のモータ及びフライホイールを一定速度まで加速し、モータを停止させ、かつフライホイール速度をクラッチの作用によりゼロまで低下させる。次いでクラッチ板を解除し、再びこの装置を一定速度まで加速すると共に、試験液体に浸漬されたクラッチパックを再び係合させる。この工程を多数回にわたり反復し、各クラッチ係合をサイクルと呼ぶ。所定の試験につき用いるサイクル数は、行なわれる特定試験によって決定される。

クラッチ使用に際し、摩擦トルクを時間の関数として記録する。得られた摩擦データは、トルク追跡自身又はトルク追跡から計算された摩擦係数のいずれかである。所望のトルク追跡の形状がトランミッション製造業者によって設定される。摩擦性能を特性化する1つの方法は次の場合にトルクを測定することである：(a) フライホイール速度が選択最大一定速度とゼロ速度との間にある場合(この種のトルク測定をここでは $T_D$ と称する)、及び(b) フライホイール速度がゼロ rpm に達した場合(この種のトルク測定をここでは $T_O$ と称する)。次いで、これらトルクを用いて $T_O/T_D$ として現されるトルク比を決定し、或いはトルク差 $T_O - T_D$ を決定することもできる。トルク比及びトルク差に最適な目標値は、自動車製造業者により設定されかつ各製造業者につき異なることができる。 $T_O/T_D$ が1.0を越えるにつれ、トランミッションは典型的にはギヤチェンジする

### 特表平3-502114 (18)

際に一層短い苛酷なシフトを示す。他方、 $T_O/T_D$  が 1.0 より低下すると、トランスマッショングリヤーチェンジに際しクラッチがスリップする危険性が増大する。同様な関係が 0 の  $T_O - T_D$  目標値に際しても存在する。

トルク追跡を摩擦係数に変換すれば、トルク比を  $\mu_O/\mu_D$  として現すことができ、ここで  $\mu_O$  は  $T_O$  の摩擦係数であり、かつ  $\mu_D$  は  $T_D$  の摩擦係数である。

トルク比に課せられる制約の他、多くのトランスマッショングリヤーチェンジ製造業者は、動的トルク  $T_D$  を少なくとも或る種の最小値にする必要がある。これは、高い動的摩擦が短い効率的な固定 (lock-up) を生ぜしめるという事実から生ずる。次いで、これは液体及びクラッチによるエネルギーの吸収を最小化させ、これにより液体温度をも最小化させる。

多くの自動車トランスマッショングリヤーチェンジ液は許容しうるトルク比を達成しうると共に最少サイクル数の後に最小の動的トルク目標値を満たしうるが、サイクル数の増加につれてこの目標値を維持することが増々困難となる。ATFがこの種の所望の摩擦特性を経時的に維持する能力を、ここでは摩擦安定性若しくは耐久性と称する。

より多量の摩擦改質剤を単に添加するだけで摩擦安定性を向上させる試みは、成功を収めていない。何故なら、これは全体的な液体摩擦特性を低下させ、特に液体の分離 (breakaway) 静トルク ( $T_S$ ) を低下させる傾向を示すからである。このパラメータ或いは分離静トルク比 ( $T_S/T_D$ )

( $T_D$ ) は、たとえばクラッチパック、バンド及びドラムのような組合部品が荷重下にてスリップする相対的傾向を反映する。この数値が低過ぎれば、スリップは自動車の運停性及び安全性を阻害しうる。

より詳細には、分離静トルク ( $T_S$ ) を、動的トルク測定順序の或る所定サイクル数を完了した後に測定する。フライホイールが 0 rpm まで復帰した後の  $T_S$  測定において、これを再びより低い rpm 、たとえば 1 rpm までクラッチの組合なしに加速する。1 rpm にてクラッチを組合させるが解除せず、したがって回転しない。クラッチ組合に際し、フライホイールにより加えられるトルクを短時間にわたりフライホイールのスリップが生ずる際に時間の関数として測定する。

摩擦改質の他の特徴は、相対的な低い滑動クラッチ速度の際にクラッチで観察される。クラッチパックが充分組合する操作をしばしば固定 (lock-up) と称する。低い滑動速度若しくは部分固定の際のクラッチの連続操作は、クラッチ板を開けた時に軋ませると共に解除させることがある。この現象をスティックースリップ (stick-slip) と称し、運転手には自動車における振動として経験される。

摩擦改質のさらに他の特徴は、驯らし (break-in) 時間である。典型的には、ATFを試験する場合、経時的な摩擦性能の変化を観察することができる。この変化は、しばしば驯らし期間と称する期間中に生ずる。驯らし時間を示さず或いは極めて短い驯らし期間をもたらす摩擦改質剤を使用するのが有利である。

トランスマッショングリヤーチェンジ設計は急激な変化を受け、したがってこの種の設計変化に合致させることを必要とする新規かつ一層厳密な要求を満たしうる ATF 添加剤の配合を必要とする。

ベース油単独では、ATF 使用に要求される多くの特殊な性質に達することさえできない。その結果、それぞれ液体の特定の性質を付与し或いは向上させるべく設計された数種の化学添加剤を用いる必要がある。したがって、1種の添加剤が2種以上の機能を果すことにより、粗成物中に存在させることを必要とする添加剤の数を減少させるのが特に有利となる。

したがって、ATF 粗成物及び他の油性粗成物に使用するのに適した1種若しくはそれ以上の性質を有する新規な添加剤につき調査が継続されている。さらに、ATF 粗成物及び他の油性粗成物に必要とされる各種の特定の性質を付与するだけでなく、互いに競合する実質的な傾向を示さずまた粗成物における各種添加剤の効果も減少させない意味で互いに適合性でもある新たな添加剤の組合せにつき調査されている。本発明はこの調査に呼応して開発された。

米国特許第 4,702,850号公報は、自動車トランスマッショングリヤーチェンジ液における摩擦改質剤としてのチオビスエタノールの或る種の C<sub>12</sub> ~ C<sub>50</sub> ヒドロカルビル置換コハク酸エステルを開示している。これら添加剤は、本発明で用いられるコハク酸エステル成分-2 反応体の範囲に含まれる。

米国特許第 4,564,826号公報は、ATFにおける摩擦改質剤としての上記コハク酸エステルの或る種の金属 (たとえば

Ca 及び Mg) エステル塩を開示している。

米国特許第 4,760,170号公報は、上記種類の或る種の油溶性金属エステル塩を製造するための解決方法を開示している。

米国特許第 4,776,969号公報は、上記コハク酸エステル摩擦改質剤と共に使用しうる或る種の環式磷酸塩摩耗防止添加剤を開示している。その第14欄、第60行以降には、他の摩擦改質剤も開示されている。

米国特許第 3,634,258号公報は、(1) オキシアルキル化脂肪族第三アミン、1-ヒドロキシアルキル-2 アルキルイミダゾリン (たとえば 1-ヒドロキシエチル-2-ヘプタデシル-2-イミダゾリン) 及びその混合物よりなる群から選択される摩擦改質剤と、(2) アルキレンポリアミンの油溶性ポリアルケニル置換スクシンイミドとを含有した自動車トランスマッショングリヤーチェンジ液を開示している。さらに、第2欄、第49行以降には他のイミダゾールも開示されていることに注目される。

米国特許第 2,622,067号公報は、油中水型エマルジョンを安定化させるための乳化剤として長鎖脂肪族モノカルボン酸とポリアルキレンポリアミンとのアミド含有反応生成物を開示している。

米国特許第 2,693,458号及び第 2,713,583号各公報は、潤滑剤に使用するためのイミダゾリン含有物質を開示している。

米国特許第 2,738,658号公報は、潤滑油のためのポリアミン脂肪酸塩及び腐食防止剤の使用を開示している。

米国特許第 3,857,791号公報は、特に 2-サイクルエンジ

特表平3-502114 (19)

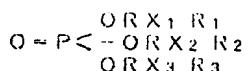
窒素含有生成物はアミジノ結合の存在を特徴とする。

米国特許第 3,110,673号は、流動点降下特性を有する無灰分の洗剤潤滑組成物に関するものである。この組成物はポリアミドからなる流動点降下性の潤滑剤を約 0.1~10% 含有し、前記ポリアミドはポリアルキレンポリアミンを直鎖脂肪酸と分枝鎖脂肪酸との配合物と反応させて製造される。これらポリアミドは、アミド基の他に 1~3 個のアミン基をも有するようなものである [たとえば米国特許第 2,852,467号、第 3,169,980号及び第 2,435,831号をも参照]。

米国特許第 4,634,543号は、ショックアブソーバに使用するための液体組成物に関するものである。この液体組成物は、潤滑油と窒素含有化合物とたとえば燐酸塩、亜燐酸塩などの燐含有化合物とからなっている。窒素含有化合物は、たとえばイソステアリン酸とテトラエチレンベンタミンとの反応生成物を固形と反応させて製造することができる。

米国特許第 4,715,643号公報は無灰分の 2-ストロークサイクル 添加剤を示しており、これはたとえばイソステアリン酸のような脂肪酸と少なくとも 3 個のアミン基を有するたとえばテトラエチレンベンタミンのようなポリアミンとの縮合により製造される。この添加剤はエンジンを綺麗に維持するとされ、潤滑油と組合せて約 10% の濃度のレベルで使用される [たとえばガソリン添加剤のような材料の使用につき米国特許第 2,622,018号をも参照]。

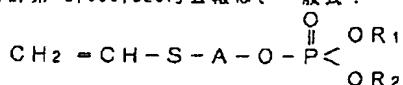
米国特許第 2,750,342号公報は、潤滑油添加剤として有用でありかつ一般式：



[式中、R は飽和脂肪族 C<sub>2</sub> ~ C<sub>3</sub> 炭化水素基を示し、X<sub>1</sub>、X<sub>2</sub> 及び X<sub>3</sub> はそれぞれ O 若しくは S を示し、さらに R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> 及び R<sub>3</sub> はそれぞれ C<sub>1</sub> ~ C<sub>18</sub> アルキル基又は O 若しくは S 原子により相互結合された一連の飽和脂肪族炭化水素基を示す]

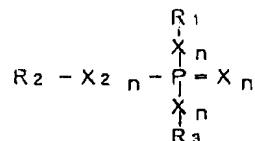
を特徴とする種類の合成燃-及び硫黄-含有化合物を示している。

米国特許第 2,960,523号公報は、一般式：



[式中、A は C<sub>2</sub> ~ C<sub>6</sub> アルキレン基であり、R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> はそれぞれ C<sub>1</sub> ~ C<sub>4</sub> アルキル基である] 有するヒドロキシアルキルビニルスルフィドの燐酸エステル誘導体を示している。開示されたエステル誘導体は、各種のアクリルエステルに対し共重合して繊維品及び紙製品のための防炎剤として用途を有する共重合体を生成する。

米国特許第 3,446,738号公報は、芳香族アミンと式：



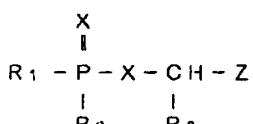
[式中、X は O 若しくは S であり、少なくとも 1 つの X は S であり、n は O 若しくは 1 であるが少なくとも 3 個の n は 1 であり、さらに R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub> 及び R<sub>3</sub> はアルキル若しくは芳香族基である]

を有する有機チオホスファイト若しくはチオホスホネートとからなるエステルベースの潤滑組成物を示している。有機チオホスファイト若しくはチオホスホネートは酸化防止剤として機能する。

米国特許第 4,081,387号公報は、多量割合の潤滑油と少量割合の式：



[式中、Y<sup>a</sup> は式：

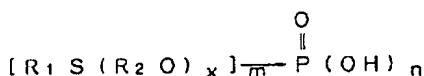


を有し、ここで Z は飽和若しくは不飽和のヒドロカルビル基であり、各 R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> は独立して 1~10 個の炭素原子を有するヒドロカルビル、ヒドロカルビルオキシ若しくは

ヒドロカルビルメルカブト基であり、R<sub>3</sub> は水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>3</sub>のヒドロカルビル基であり、XはS若しくはOであり、さらにY<sup>b</sup>は-R<sub>4</sub>H若しくは-R<sub>4</sub>-S-R<sub>5</sub>であり、ここでR<sub>4</sub>はC<sub>1</sub>～C<sub>3</sub>の二価ヒドロカルビル基であり、R<sub>5</sub>はH若しくはY<sup>a</sup>である】

の少なくとも1種の燐-及び硫黄-含有添加剤とからなる潤滑組成物を開示している。開示された潤滑組成物は向上した酸化劣化耐性及び摩耗防止特性を示す。

米国特許第4,511,480号公報は、ガス深井戸における鉄金属のための腐蝕阻止剤としてオキシアルキル化チオールのホスファイトエステルを開示している。開示されたエステルは式：



[式中、R<sub>1</sub>はアルキル、シクロアルキル、アリール、アラルキル及び複素環式基を示し、R<sub>2</sub>はアルキルを示し、xは1～4であり、mは1若しくは2であり、nはmが2であれば1又nはmが1であれば2である]

を有する。

米国特許第3,933,659号公報は、潤滑粘度を有する多量の油と有効量のそれぞれ次の物質とからなる潤滑油組成物を開示している：(1)アルケニルスクシンイミド、(2)ジヒドロカルビルジチオ塩酸の第二族金属塩、(3)(4)二価及び他の多価アルコールの脂肪酸エステル及びその油溶性オ

キシアルキル化誘導体、(b)低分子量アミノ酸の脂肪酸アミド、(c)N-脂肪族アルキル-N、N-ジエタノールアミン、(d)N-脂肪族アルキル-N、N-ジ-(エトキシエタノール)アミン、(e)N-脂肪族アルキル-N、N-ジ-ポリ-(エトキシ)エタノールアミン、及び(f)その混合物よりなる群から選択される化合物、並びに(4)塩基性の硫化アルカリ土類金属アルキル石炭酸塩。この種の潤滑組成物は、液体カプリングを必要とするシステムにおける機能流体、液圧流体及び(又は)相対運動部品の潤滑として、特に自動車トランスミッション液として有用である。

米国特許第4,201,684号公報は、摩擦減少量のオキシアルキル化アミンの硫化脂肪酸アミド、エステル若しくはエステルアミドを含有した内燃機関におけるクラシクケース潤滑剤として使用するのに適する潤滑油組成物に関するものである。

#### 発明の要旨

本発明は、少なくとも2個(好ましくは少なくとも3個)のアミン基を有するポリアミン或る種の直鎖若しくは分枝鎖脂肪酸との反応により形成されたアミド含有生成混合物(ここでは成分-1と称する)が摩擦改質特性を有するという知見に1部基づいている。成分-1アミドは、さらに分散剤、酸化防止剤などを包含する一般的に配合された油性組成物に対し安定性、非腐蝕性かつ適合性であり、さらに自動車トランスミッション液の摩擦安定性に対し顕著に悪影響を及ぼさない。要するに、本発明の成分-1アミド生成物は油性

組成物、特に動力伝達液、特に好ましくは自動車トランスミッション液に使用するための望ましい添加剤であると考えられる。

成分-1をここに説明するような或る種の酸/エステル材料(ここでは成分-2と称する)と組合せることにより、性能上の他の変更をも達成することができる。

より詳細には、成分-1は極めて有力な摩擦改質剤であって、剛らし期間が殆んどなく或いは極めて短いという効果を示し、たとえばほぼ即座にその最大摩擦効果を発揮する。すなわち成分-1は極めて少量で用いることができる。たとえば約0.7重量%以上の多量の成分-1を用いても、この液体の摩擦特性は或る種のトランスミッション製造業者の基準には低過ぎることもある。しかしながら、典型的に用いられる少量の成分-1のため、成分-1は摩擦能力を喪失し始める。たとえば、これは多数の試験サイクル数(たとえば18,000サイクルのG.M.HEF CAD試験)を用いる摩擦試験により測定される。たとえばトランスミッション製造業者の仕様が長サイクルの試験にわたる摩擦安定性と高いT<sub>S</sub>との両者を要求する場合、より多量の成分-1の添加により達成される摩擦安定性の向上はT<sub>S</sub>の低下を伴う。

すなわち或る種の用途には、成分-1の摩擦安定性をさらに向上しうることが望ましい。

摩擦改質剤としての成分-2は、成分-1ほど強力でない。その結果、これは単独使用する場合には成分-1と対比してより多量に用いられる。さらに成分-2は成分-1単独より

も良好な摩擦安定性(T<sub>n</sub>の不存在下)を有するが、そのワックス性及び相対的に高い使用濃度のため、ATF液のブルックフィールド粘度として測定される貧弱な低温粘度特性を有する。この困難性はATFに用いられる量を減少させて最小化させうるが、この場合は摩擦性能も影響を受ける。最後に、成分-2単独は長い剛らし期間、たとえばSAE No.2摩擦試験において約5,000サイクルまでの期間を有する。

動力伝達液にて成分-1と成分-2との混合物(未反応型若しくは反応型のいずれか)を用いることにより殆んど剛らし期間を示さず、しかも全試験期間にわたり良好な摩擦安定性を有すると共に良好な低温特性を示す適合系が得られることを突き止めた。したがって、各成分単独の利点を各単独の洗剤的な欠点なしに得ることができる。

さらに組成物における成分-1:成分-2の重量比を調節することにより、種々異なるエネルギーレベル又はクラッチスライド速度にて各自動車製造業者の種々異なる要求に応じ摩擦特性を改質することができる。

本発明の1面において、実質的にイミダゾールを含まない混合反応生成物(すなわち成分-1)は(1)ポリアミンと(2)脂肪酸とを反応させることにより製造される。このポリアミンはその構造内に全部で約2～約60個の窒素原子と2～約15個、好ましくは3～約15個の窒素原子とが存在することを特徴とし、窒素原子の少なくとも1個は第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個、好ましくは少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存

特表平3-502114 (21)

在りる。

脂肪酸は式：



[式中、Rは約9～約29個の炭素原子、好ましくは約11～約23個の炭素原子を有する直鎖若しくは分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪族ヒドロカルビル基である]を特徴とする。

本発明の他面において、上記混合反応生成物は油性組成物における摩擦改質添加剤として用いられる。混合反応生成物は、無灰分散剤と組合せて（好ましくは他の慣用の添加剤、たとえばシール潤滑剤、酸化防止剤、粘度指数向上剤などを組合せて）使用すれば、摩耗防止と静的及び動的摩擦係数と摩擦改質及び安定性と分散性とスラッジ阻止と酸化防止性と耐腐蝕性との適切なバランスの観点から厳格なATF要求を満たすのに特に適している。

さらに、本発明の他の具体例において、上記混合反応生成物を好ましくは少なくとも1種の分散剤と組合せてなる自動車トランスミッション液として使用するに適した潤滑油混相組成物が提供される。

他の本発明の具体例においては、摩擦改質量の上記成分-1生成物を無灰分散剤と一緒に（好ましくはシール潤滑剤、酸化防止剤、摩耗防止剤、粘度指数向上剤及び（又は）耐摩耗性、摩擦耐久性及び酸化阻止性のような多機能特性を有す

る物質から選択される少なくとも1種の他の成分と一緒に）溶解若しくは分散して含有する潤滑油からなる動力伝達液として使用するに適した潤滑油混相組成物も提供される。

他の本発明の実施態様において、動力伝達液として使用するに適した潤滑油組成物の摩擦改質を向上させる方法も提供され、この方法は潤滑油組成物に上記成分-1反応生成物を無灰分散剤の他に添加することを特徴とする。

さらに本発明の他面において、少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との混合及び（又は）反応から形成される組成物も提供される。

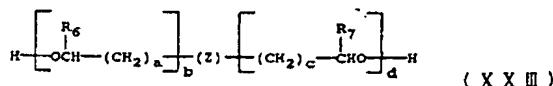
A. 成分-1は

(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子原子の少なくとも2個が第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させ、好ましくは(b)得られた成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するに充分な方式及び条件下で行ない、さらに

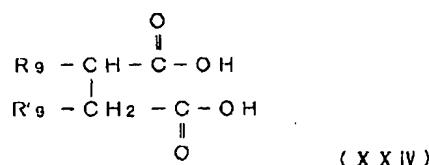
B. 成分-2は

(i) 構造式：

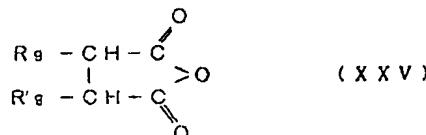


[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、乙は-S-、-S-S-、-O-及び>NR<sub>8</sub>よりなる群から選択される結合基を示し、ここでR<sub>8</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>アルキル又はC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当たり約1～約2モルの各構造式：



及び



[R<sub>9</sub>'は水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>脂肪族ヒドロカルビルであり、R<sub>9</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族炭化水素基である]

により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物である。

前記成分-1及び成分-2を反応させることを意図する場合、成分-2の生成反応は(a)反応体B-iの少なくとも1個ヒドロキシ基を反応体B-iiの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成すると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するに充分な方式及び条件下で行なわれる。成分-1及び成分-2を、反応させる場合には、その酸ノアミン塩を生成するに充分な条件にかける。

本発明の他面において、潤滑油と摩擦改質量の上記成分-1及び成分-2含有組成物とからなる動力伝達液として使用するに適した潤滑油組成物が提供される。

さらに本発明の他面において、たとえば自動車トランスミッション液のような動力伝達液も提供され、これは潤滑油と摩擦改質量の上記成分-1及び成分-2含有組成物とで構成される。

さらに本発明の他面において、動力伝達液として使用するに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法が提供され、この方法は上記成分-1及び成分-2含有組成物を摩擦改質剤として用いることを特徴とする。

好適具体例の説明

本発明は3種の異なる実施態様に向けられる。

第1実施態様において、或る種のアミド含有物質は、摩擦改質剤として単独使用しうるものであると同定される。便宜上、この種のアミドをここでは総合して成分-1と称する。この実施態様の好適特徴において、成分-1は実質的にイミダゾールを含まず、さらに少なくとも1個の酸中和性アミン基を有して実施態様2及び3に関し後記する成分-2との反応及び塩形成を可能にする。成分-1がこの種の酸中和性アミン基を有する場合、しばしばここでは成分-1Aと称する。成分-1Aはイミダゾール構造を有することができる。

第2実施態様においては、少なくとも1種の成分-1をここでは成分-2と称する少なくとも1種の共摩擦改質剤と混合して用いられる。より詳細には、成分-2は少なくとも1個のエステル基と少なくとも1個の酸もしくは酸無水物基とを有する。

第3実施態様においては、少なくとも1種の成分-1Aを少なくとも1種の成分-2と予備反応させて対応の酸/アミン塩を生成させ、この塩を摩擦改質剤として用いる。実施態様2および3の組成物の混合物も含まれる。

より詳細には、本発明の成分-1は次の2種の成分、すなわち(A-i)少なくとも1種のポリアミン、および(A-ii)少なくとも1種の脂肪族モノ酸(しばしばここでは脂肪酸と称する)を混合物として反応させることにより生成される化合物の混合物からなっている。

本発明の成分-2は、(i)少なくとも1種のアルカノールと、(ii)少なくとも1種のヒドロカルビル置換されたジカルボン酸物質との反応生成物を含有するエステルからなっている。

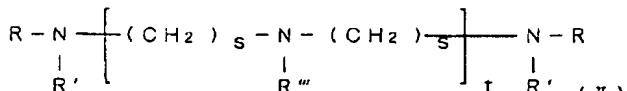
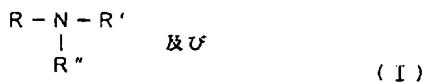
A. 成分-1(i) ポリアミン

ポリアミン反応体は全部で少なくとも2個、典型的には約2~約60個、好ましくは約2~約40個(たとえば3~約20個)の炭素原子と、少なくとも2個、好ましくは少なくとも3個、典型的には約2~約15個(たとえば3~約15個)、好ましくは3~約12個、特に好ましくは約3~約9個の窒素原子とを分子内に有し、これら窒素原子の少なくとも1個は第一アミン基として存在すると共に、残余の窒素原子の少なくとも1個、好ましくは少なくとも2個は第一若しくは第二アミン基として存在する。実施態様1のみについては、成分-1は実質的にイミダゾール構造を持たない。

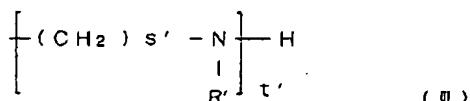
以下のアミンの説明は炭素及び窒素原子の含有量に関し上記制約を受け、さらに次の式に関する可変の基はこれら制約にしたがって選択すべきである。

有用なアミンは好ましくはポリアルキレンポリアミンであってヒドロカルビルアミンとすることができる、或いは他の基、たとえばヒドロキシ基、アルコキシ基、アミド基、ニトリル、イミダゾリン基などを含むヒドロカルビルアミンとすることもできる。1~6個のヒドロキシ基、好ましくは1~3個のヒドロキシ基を有するヒドロキシルアミンが特に有用である。

好適アミンは脂肪族飽和アミンであって、一般式：



[式中、R、R'、R''及びR'''は独立して水素、C<sub>1</sub>~C<sub>2</sub>直鎖若しくは分枝鎖アルキル基、C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルコキシC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基、C<sub>2</sub>~C<sub>12</sub>ヒドロキシアミノアルキレン基及びC<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルアミノC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され、さらにR'''は式：



の基とすることもでき、ここでR'は上記の意味を有し、s及びs'は同一若しくは異なる2~6、好ましくは2~4の数値とすることができます、t及びt'は同一若しくは異なるものであって0~10、好ましくは2~7、特に好ましくは約3~7の整数であり、ただしR'は少なくとも1であり、tとt'との合計は約15以下であり、全部で少なくとも2個、好ましくは少なくとも3個、たとえば約3~15個の窒素原子を化合物内に有し、窒素原子の少なくとも1個

は第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個、好ましくは少なくとも2個は第一若しくは第二アミン基として存在する]

のものを包含する。上記式を有する最も好適なアミン化合物は式IIによって示され、少なくとも2個の第一アミン基と少なくとも1個、好ましくは少なくとも3個の第二アミン基とを有する。

限はしないが適するアミン化合物の例はポリエチレンアミン、たとえばジエチレントリアミン；トリエチレンテトラミン；テトラエチレンベンタミン；ポリブロビレンアミン、たとえばジー(1,2-ブロビレン)トリアミン；ジー(1,3-ブロビレン)トリアミン；及びその混合物を包含する。

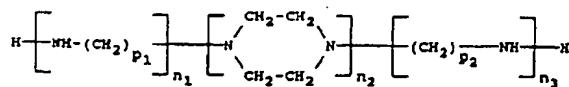
他の有用なアミン化合物は脂環式及び複素環式ポリアミンを包含する。

ここで用いる「複素環式ポリアミン」という用語は、必要数の窒素原子と必要数の上記第一若しくは第二窒素とを有するような複素環式アミンを説明することを目的とし、少なくとも1個の窒素は複素環中に異原子として存在する。すなわち、充分な第一及び第二窒素が全体として複素環式ポリアミンに存在する限り、環中のヘテロ-N-原子は第三アミノ窒素、すなわち環窒素に直接結合した水素を持たないものとすることはできる。複素環式アミンは飽和若しくは不飽和とすることはでき、たとえばニトロ、アルコキシ、アルキルメルカブト、アルキル、アルケニル、アリール、アルカリール若

特表平3-502114 (23)

最も好適な複素環式ポリアミンは、一般式 (IV) :

(IV)



[式中、 $p_1$  及び  $p_2$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1~4の整数であり、 $n_1$ 、 $n_2$  及び  $n_3$  は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1~3の整数であり、ただし  $n_1$  と  $n_3$  との合計は少なくとも3である]により示すことができる。

アミン化合物の市販混合物を有利に使用することができる。たとえば、アルキレンアミンの1つの製造方法はアルキレンジハライド（たとえば二塩化チレン若しくは二塩化プロピレン）とアンモニアとの反応を含み、その結果窒素の対がアルキレン基により結合されて、たとえばジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンベンタミン及び異性体ビペラジンのような化合物を形成するアルキレンアミンの複合混合物をもたらす。平均して約5~7個の窒素原子を1分子当たりに有する低価格のポリ（エチレンアミン）化合物が、たとえば「ポリアミンH」、「ポリアミン400」、「ダウポリアミンE-100」などの商品名で市販されている。

さらに、より単純及び一層入手し易い上記ポリアミンの多くは互いに結合して窒素原子含有量を増大させ、これにより1分子当たり15個の窒素原子という割約に達することができる。

しくはアラルキル置換基のような各種の置換基を有することができる。一般に、置換基における炭素原子の总数は約50を越えない。複素環式アミンは窒素以外の異原子、特に酸素及び硫黄を有することができる。明らかに、これらは2個以上の窒素へテロ原子を有することができる。5-及び6-員の複素環が好適である。

適する複素環式ポリアミンのうちには、その構造内に次の環構造を有するものがある：アジリジン、アゼチジン、アソリジン、ビリジン、ピロール、インドール、ビペリジン、イミダゾール、ビペラジン、イソインドール、プリン、モルホリン、チオモルホリン、アゼビン、アゾシン、アゾニン、アゼシン及び2種若しくはそれ以上のこれらの混合物。好適複素環式アミンは、飽和5-及び6-員の複素環式アミンであってテロ環に窒素と酸素及び（又は）硫黄とのみを有し、特にビペリジン、ビペラジン、チオモルホリン、モルホリン、ビロリジンなどである。モノー及びポリーアミノアルキル-置換ビペリジン、アミノアルキル-置換ビペラジン、アミノ-アルキル-置換モルホリン及びアミノアルキル-置換ビロリジンが特に好適である。一般に、アミノアルキル置換基はヘテロ環の1部を形成する窒素原子で置換される。この種の複素環式アミンの特定例はN-アミノ-プロピルモルホリン、N-アミノエチルビペラジン及びN,N'-ジアミノエチルビペラジンを包含する。実施態様1についてイミダゾールは用いられない。

これは米国特許第4,857,217号公報に記載されたようなエチレン系不飽和及び末端アミン反応性官能基を有する二官能性物質の使用により達成することができ、上記米国特許公報を参考のためここに引用する。分子の1末端におけるエチレン系不飽和は1種の中間ポリアミンの第一若しくは第二窒素と反応してアミノ基を形成し、さらにカルボキシル若しくは誘導基は他の中間ポリアミン分子の第一若しくは第二窒素と反応してアミド基を形成する。得られる化合物をしたがってここではアミドーアミンと称し、これは成分-1を作成するべく使用するポリアミン反応体A-1として機能する。このアミドーアミンは、出発反応体の中間アミンのいずれよりも多い窒素含有量を1分子当たりに有する。すなわち、アミドーアミンは次いで式Iのモノ酸反応体と反応して成分-1を形成する。したがって、アミドーアミンは上記のものに対する代案アミンを示すに過ぎない。

より詳細には、アミドーアミン化合物は、少なくとも1種のポリアミンを式：



[式中、Xは硫黄若しくは酸素であり、Yは-O-R<sup>4</sup>、-SR<sup>4</sup>若しくは-NR<sup>4</sup> (R<sup>5</sup>)であり、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>は同一若しくは異なる水素又は置換若しくは未置換のヒドロカルビルである]

の少なくとも1種のα、β-不飽和化合物と反応させて製造

される。

R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>がヒドロカルビルである場合、これらの基はアルキル、シクロアルキル、アリール、アルカリール、アラルキル若しくは複素環式と/or が可能である。これらは反応混合物の各成分に対し実質的にアミドーアミンの製造につき選択された条件下で不活性である基により置換することができる。この種の置換基はヒドロキシ、ハロゲン（たとえばCl、F、I、Br）、-SH及びアルキルチオを包含する。R<sup>1</sup>~R<sup>5</sup>の1種若しくはそれ以上がアルキルである場合、この種のアルキル基は直鎖若しくは分岐鎖と/or が可能である。一般に1~20個、より一般に1~10個、好ましくは1~4個の炭素原子を有する。この種のアルキル基の例はメチル、エチル、プロピル、ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ドデシル、トリデシル、ヘキサデシル、オクタデシルなどである。R<sup>1</sup>~R<sup>5</sup>の1種若しくはそれ以上がアリールである場合、このアリール基は一般に6~10個の炭素原子を有する（たとえばフェニル、ナフチル）。

R<sup>1</sup>~R<sup>5</sup>の1種若しくはそれ以上がアルカリールである場合、このアルカリール基は一般に約7~20個の炭素原子、好ましくは7~12個の炭素原子を有する。この種のアルカリール基の例はトリル、m-エチルフェニル、o-エチルトリル及びm-ヘキシルトリルである。R<sup>1</sup>~R<sup>5</sup>の1種若しくはそれ以上がアラルキルである場合、このアリール成分は一般にフェニル若しくは(C<sub>1</sub>~C<sub>8</sub>)アルキル-置換フェノ

特表平3-502114 (24)

ヘルで構成され、かつアルキル成分は一般に1~12個の炭素原子、好ましくは1~6個の炭素原子を有する。この種のアラルキル基の例はベンジル、O-エチルベンジル及び4-イソブチルベンジルである。R<sub>1</sub>~R<sub>5</sub>の1種若しくはそれ以上がシクロアルキルである場合、このシクロアルキル基は一般に3~12個の炭素原子、好ましくは3~6個の炭素原子を有する。この種のシクロアルキル基の例はシクロプロピル、シクロアチル、シクロヘキシル、シクロオクチル及びシクロドデシルである。R<sub>1</sub>~R<sub>5</sub>の1種若しくはそれ以上が複素環式である場合、この複素環式基は一般に6個~12個の少なくとも1個の環を有する化合物よりなり、ここで1個以上の環炭素原子は酸素若しくは窒素により交換される。この種の複素環式基の例はフリル、ビラニル、ビリジル、ビペリジル、ジオキサニル、テトラヒドロフリル、ビラジニル及び1,4-オキサジニルである。

ここで用いられるα, β-エチレン系不飽和カルボン酸化合物は次式：



[式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は同一若しくは異なる水素又は置換若しくは未置換の上記ヒドロカルビルである]を有する。式VIを有するこの種のα, β-エチレン系不飽和カルボン酸化合物の例はアクリル酸、メタクリル酸、並びにアクリル酸及びメタクリル酸、2-ブテン酸、2-ヘキセン

酸、2-デセン酸、3-メチル-2-ヘブテン酸、3-メチル-2-ブテン酸、3-フェニル-2-ブテン酸、3-シクロヘキシル-2-ブテン酸、2-メチル-2-ブテン酸、2-ブロビル-2-ブロベン酸、2-イソブロビル-2-メチル-2-ベンテン酸、2-ブロベン酸のメチル、エチル、イソブロビル、n-アチル及びイソアチルエステル、2-ブロベン酸メチル、2-メチル-2-ブロベン酸メチル、2-ブテン酸メチル、2-ヘキセン酸エチル、2-デセン酸イソブロビル、2-ブエン酸フェニル、2-ブロベン酸エーテル、2-ブロベン酸オクタデシル、2-デセン酸ドデシル、2,3-ジメチル-2-ブテン酸シクロプロピル、3-フェニル-2-ブロベン酸メチルなどである。

ここで用いるα, β-エチレン系不飽和カルボン酸チオエ斯特化合物は次式：



[式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>及びR<sub>4</sub>は同一若しくは異なるものであって水素又は置換若しくは未置換の上記ヒドロカルビルである]

を有する。式VIIのこの種のα, β-エチレン系不飽和カルボン酸チオエ斯特の例は2-ブテン酸メチルメルカブト、2-ヘキセン酸エチルメルカブト、2-デセン酸イソブロビルメルカブト、2-ブエン酸フェニルメルカブト、2-ブロベン酸t-アチルメルカブト、2-ブロベン酸オクタデシル

メルカブト、2-デセン酸ドデシルメルカブト、2,3-ジメチル-2-ブテン酸シクロプロピルメルカブト、3-フェニル-2-ブロベン酸メチルメルカブト、2-ブロベン酸メチルメルカブト、2-メチル-2-ブロベン酸メチルメルカブトなどである。

ここで用いるα, β-エチレン系不飽和カルボキシアミド化合物は次式：



[式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>及びR<sub>5</sub>は同一若しくは異なるものであって水素又は上記の置換若しくは未置換のヒドロカルビルである]

を有する。式VIIIのα, β-エチレン系不飽和カルボキシアミドの例は2-ブテンアミド、2-ヘキセンアミド、2-デセンアミド、3-メチル-2-ヘブテンアミド、3-メチル-2-ブテンアミド、3-フェニル-2-ブロベンアミド、3-シクロヘキシル-2-ブテンアミド、2-メチル-2-ブテンアミド、2-ブロビル-2-ブロベンアミド、2-イソブロビル-2-ヘキセンアミド、2,3-ジメチル-2-ブテンアミド、3-シクロヘキシル-2-メチル-2-ベンテンアミド、N-メチル-2-ブテンアミド、N,N-ジエチル-2-ヘキセンアミド、N-イソブロビル-2-デセンアミド、N-t-ブチル-2-ブロベンアミド、N-オクタデシル-2-ブロベンア

ミド、N,N-ジドデシル-2-デセンアミド、N-シクロプロピル-2,3-ジメチル-2-ブテンアミド、N-メチル-3-フェニル-2-ブロベンアミド、2-ブロベンアミド、2-メチル-2-ブロベンアミド、2-エチル-2,2-ブロベンアミドなどである。

ここで用いるα, β-エチレン系不飽和チオカルボン酸化合物は次式：



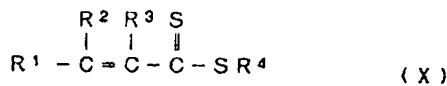
[式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>及びR<sub>5</sub>は同一若しくは異なるものであって水素又は上記の置換若しくは未置換ヒドロカルビルである]

を有する。式IXのこの種のα, β-エチレン系不飽和チオカルボン酸化合物の例は2-ブテンチオン酸、2-ヘキセンチオン酸、2-デセンチオン酸、3-メチル-2-ヘブテンチオン酸、3-メチル-2-ブテンチオン酸、3-フェニル-2-ブロベンチオン酸、3-シクロヘキシル-2-ブテンチオン酸、2-メチル-2-ブテンチオン酸、2-ブロビル-2-ブロベンチオン酸、2-イソブロビル-2-ヘキセンチオン酸、2,3-ジメチル-2-ブテンチオン酸、3-シクロヘキシル-2-メチル-2-ベンテンチオン酸、2-ブロベンチオン酸、2-ブロベンチオン酸メチル、2-ブテンチオン酸メチル、2-ヘキセンチオン酸イソブロ

特表平3-502114(25)

ル、2-ベンテンチオン酸フェニル、2-プロベンチオニ酸 $\tau$ -ブチル、2-アロベンチオニ酸オクタデシル、2-デセンチオニ酸ドデシル、2,3-ジメチル-2-アテンチオニ酸シクロプロピル、3-フェニル-2-プロベンチオニ酸メチルなどである。

ここで用いる $\alpha$ ,  $\beta$ -エチレン系不飽和ジチオニ酸及び酸エステル化合物は次式：



[式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は同一若しくは異なるものであって水素又は上記の置換若しくは未置換ヒドロカルビルである]

を有する。式Xのこの種の $\alpha$ ,  $\beta$ -エチレン系不飽和ジチオニ酸及び酸エステルの例は2-アテンジチオニ酸、2-ヘキセンジチオニ酸、2-デセンジチオニ酸、3-メチル-2-ヘアテンジチオニ酸、3-メチル-2-アテンジチオニ酸、3-フェニル-2-プロベンジチオニ酸、3-シクロヘキシル-2-アテンジチオニ酸、2-イソプロピル-2-ヘキセンジチオニ酸、2,3-ジメチル-2-アテンジチオニ酸、3-シクロヘキシル-2-メチル-2-ベンテンジチオニ酸、2-プロベンジチオニ酸メチル、2-メチル-2-プロベンジチオニ酸メチル、2-アデンジチオニ酸メチル、2-ヘキセンジチオニ酸エチル、2-デセンジチオニ酸イソプロピル、2-ベンテンジチオニ酸フェニル、2-プロベンジチオニ酸

$\tau$ -ブチル、2-アロベンジチオニ酸オクタデシル、2-デセンジチオニ酸ドデシル、2,3-ジメチル-2-アテンジチオニ酸シクロプロピル、3-フェニル-2-アロベンジチオニ酸メチルなどである。

ここで用いる $\alpha$ ,  $\beta$ -エチレン系不飽和チオカルボキシアミド化合物は次式：



[式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>及びR<sup>5</sup>は同一若しくは異なるものであって水素又は上記の置換若しくは未置換ヒドロカルビルである]

を有する。式Xの $\alpha$ ,  $\beta$ -エチレン系不飽和チオカルボキシアミドの例は2-アテンチオアミド、2-ヘキセンチオアミド、2-デセンチオアミド、3-メチル-2-ヘアテンチオアミド、3-メチル-2-アテンチオアミド、3-フェニル-2-プロベンチオアミド、3-シクロヘキシル-2-アテンチオアミド、2-メチル-2-ヘアテンチオアミド、2-アロビル-2-プロベンチオアミド、2-アロビル-2-プロベンチオアミド、2-イソプロビル-2-ヘキセンチオアミド、2,3-ジメチル-2-アテンチオアミド、3-シクロヘキシル-2-メチル-2-ベンテンチオアミド、N-メチル-2-アテンチオアミド、N,N-ジエチル-2-ヘキセンチオアミド、N-イソプロビル-2-デセンチオアミド、N-フェニル-2-ベンテンチオアミド、N- $\tau$ -ブチ

ル-2-プロベンチオアミド、N-オクタデシル-2-プロベンチオアミド、N,N-ジドテシル-2-デセンチオアミド、N-シクロアロビル-2,3-ジメチル-2-アテンチオアミド、N-メチル-3-フェニル-2-プロベンチオアミド、2-アロベンチオアミド、2-メチル-2-プロベンチオアミド、2-エチル-2-プロベンチオアミドなどである。

中間ポリアミンと反応させるのに好適な化合物はアクリル酸及び(低級アルキル)置換アクリル酸の低級アルキルエステルである。この種の好適化合物の例は式：



[式中、R<sup>3</sup>は水素又はC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基、たとえばメチルであり、R<sup>4</sup>は水素又はC<sub>1</sub>~C<sub>4</sub>アルキル基であってアミド基を形成するよう除去することができ、たとえばメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、sec-ブチル、 $\tau$ -ブチル、アリール、ヘキシルなどである]

の化合物である。好適具体例において、これら化合物はアクリル及びメタクリルエステル、たとえばアクリル酸メチル若しくはエチル、メタクリル酸メチル若しくはエチルである。選択された $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和化合物がXを酸素とする式Vの化合物からなる場合、中間ポリアミンとの得られる反応生成物は少なくとも1個のアミド結合(-C(O)N<)を有し、

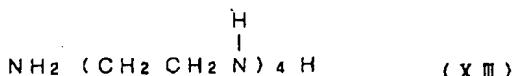
この種の物質をここでは「アミドーアミン」と称する。同様に、式Vの選択された $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和化合物がXを硫黄とする化合物からなる場合、中間ポリアミンとの得られる反応生成物はチオアミド結合(-C(S)N<)を有し、これらの物質をここでは「チオアミドーアミン」と称する。便宜上、次の説明はアミドーアミンの製造及び使用に向けられるが、この種の説明はチオアミドーアミンにも適用しうることが了解されよう。

形成されるアミドーアミンの種類は、反応条件と共に変化する。たとえば、線状性の高いアミドーアミンは、実質的に当モル量の不飽和カルボキシレートを中間ポリアミンと反応させた際に生成される。過剰量の式Vのエチレン系不飽和反応体の存在は、実質的に当モル量の反応体を用いた場合に得られるよりも架橋度の高いアミドーアミンを生成する傾向を有する。経済的若しくはその他の理由から過剰のアミンを用いる架橋アミドーアミンが望ましい場合、一般にはほぼ少なくとも10%、たとえば10~300%若しくはそれ以上、たとえば25~200%のモル過剰のエチレン系不飽和反応体を用いる。一層効率的な架橋には、好ましくは過剰のカルボキシル化物質を使用すべきである。何故なら、一層純粋な反応が持続するからである。たとえば、10~50%のような約1~100%若しくはそれ以上のモル過剰のカルボキシル化物質が用いられる。それ以上の過剰量も所望に応じ用いることができる。

要するに、他の因子を考慮しなければ、当モル量の反応体はより線状度の高いアミドーアミンを生成する傾向を示すの

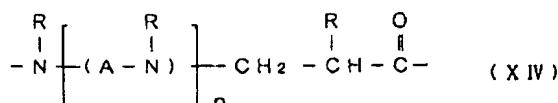
特表平3-502114 (26)

に対し、過剰量の式Vの反応体はより架橋度の高いアミドアミンを生成する傾向を示す。中間ポリアミンが多い程（すなわち分子におけるアミノ基の個数が多い程）、架橋の統計的確率が大となる。何故なら、たとえば式：



のテトラエチレンベンタミンのようなテトラアルキレンベンタミンはエチレンジアミンより多数の不安定水素を有するからである。

このように形成されたこれらアミドアミンアダクトは、アミド基とアミノ基との両者を持つとする。その最も簡単な具体例において、これらは次の理想式：



[式中、Rは同一でも異なるてもよく水素又は置換基、たとえば炭化水素基、たとえばアルキル、アルケニル、アリールなどであり、Aはポリアミンの成分であって、たとえばアリール、シクロアルキル、アルキルなどとすることができ、さらにnはたとえば1~10若しくはそれ以上の整数である]

の単位により示すことができる。

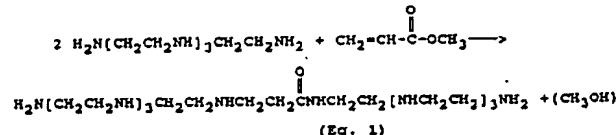
上記の单纯化した式は線状アミドアミン塩結合を示す。

しかしながら、架橋した鹽結合も、或る種の条件を用いて生成させることができる。何故なら、この鹽結合は不安定な水素を有して二重結合に対し付加することにより或いはカルボキシル基でアミド化することにより不飽和成分と反応しうるからである。

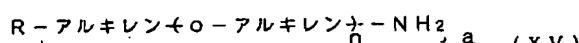
しかしながら、好ましくはアミドアミンは実質的度まで架橋せず、より好ましくはほぼ線状である。

好ましくは、中間ポリアミン反応体は少なくとも1個の第一アミン基（より好ましくは2~4個の第一アミン）基を1分子当たりに有し、さらに式Vのポリアミン及び不飽和反応体を式Vの不饱和反応体1モル当たり約3~5当量のポリアミン反応体における第一アミンの量にて接触させる。

選択されたポリアミンとアクリル型化合物との間の反応は、任意適当する温度で行なわれる。反応体及び生成物の分解点までの温度を用いることができる。実際上、一般に反応は、これら反応体を100°C以下、たとえば80~90°Cにてたとえば数時間のようないろいろな時間にわたり加熱して行なわれる。アクリル型エステルを用いる場合、反応の進行はアミドを形成する際のアルコールの除去により判定することができる。初期の反応部分に際し、アルコールは100°C未満で全く容易に除去され、たとえばメタノール若しくはエタノールのような低沸点アルコールの場合に容易に除去される。反応が遅く進行する場合、温度を上昇させて重合を発結させると共に、温度を150°Cまで反応の終り頃に上昇させることができる。アルコールの除去は、一般にもはやアルコールが発生しなくな



モノ酸と反応して成分-1を生成するのに有用なアミンはさらにたとえば式：



[式中、「n」は約1~40の数値を有し、ただし全nの合計は約3~70、好ましくは約6~約35であり、Rは10個までの炭素原子を有する多価飽和炭化水素基であり、ここでR基における置換基の個数は「a」の数値により示され、この数値は3~6である]

を有するようなポリオキシアルキレンポリアミンを包含する。式XVにおけるアルキレン基は約2~7個、好ましくは約2~4個の炭素原子を有する直鎖若しくは分枝鎖とすることができる。

上記式XVのポリオキシアルキレンポリアミン、好ましくはポリオキシアルキレントリアミンは約200~約4000、好ましくは約400~約2000の範囲の平均分子量を有することができる。好適ポリオキシアルキレンポリアミンは、約200~2000の範囲の平均分子量を有するポリオキシプロピレントリアミン及びポリオキシエチレントリアミンを包含する。ポリ

特表平3-502114(27)

オキシアルキレンポリアミンは市販されており、たとえばジェファーソン・ケミカル・カンパニー社から「ジェファミンD-230、D-400、D-1000、D-2000、T-403」などとして入手することができる。

(ii) モノ酸

上記任意のアミン含有化合物と反応させて本発明の成分-1反応体を生成させるべく使用する脂肪族モノ酸反応体A-II(すなわち脂肪酸)は式:



[式中、Rは脂肪族ヒドロカルビル基であって直鎖若しくは分枝鎖の飽和若しくは不飽和ヒドロカルビル基を包含し、典型的には約9～約29個、好ましくは約13～約23個、特に好ましくは約15～約20個の炭素原子を有する脂肪族基である]

によって特性化することができる。使用する場合、「脂肪酸」という用語は便利のために用いられ、合成的に製造しうるのと天然原料から由来せねばならないことを意味しない。「ヒドロカルビル」という用語は、ここでは実質的なヒドロカルビル基及び純粋なヒドロカルビル基を包含すべく使用する。実質的なヒドロカルビルであると言うこれら基の説明は、ここに記載したようなその使用に対し適切な基のヒドロカルビル特性若しくは性質に顕著に影響を及ぼすような非ヒドロカルビル置換基若しくは非炭素原子を持たないことを意味する。

たとえば本発明の意味において、純粹なヒドロカルビルC<sub>20</sub>アルキル基及びメトキシ置換基で置換されたC<sub>20</sub>アルキル基は、その性質において本発明での使用に対し実質的に同様であり、かつヒドロカルビルである。脂肪酸はモノ酸であって、好ましくは末端位置するカルボキシリ基を有する。

適する脂肪酸の代表例はノナン酸（ペラルゴン酸）、テカン酸（カブリノン酸）；ウンデカン酸；ドデカン酸（ラウリン酸）；トリデカン酸；テトラデカン酸（ミリスチン酸）；ベンタデカン酸；ヘキサデカン酸（バルミチン酸）；ヘプタデカン酸（マーガリン酸）；オクタデカン酸（ステアリン酸）、（イソステアリン酸）；ノナデカン酸；エイコサン酸（アラキドン酸）；ドコサン酸（ベヘン酸）テトラコサン酸（リグノセリン酸）；ヘキサコサン酸（セロチン酸）；オクタコサン酸（モンタニン酸）；トリアコントン酸（メリシン酸）；ノネン酸；ドセン酸；ウンデセン酸；ドデセン酸；トリデセン酸；ベンタデセン酸；ヘキサデセン酸；オクタデセン酸（たとえばオレイン酸）；シコセン酸；テトラコセン酸；12-ヒドロキシステアリン酸；リシノレイン酸；並びにその混合物を包含する。

好適なモノ酸はステアリン酸、イソステアリン酸及びステアリン酸とイソステアリン酸との混合物（たとえば約1:0.8~約1:9、好ましくは1:5のステアリン酸対イソステアリン酸の重量比）である。

ヒドロカルビルの特性又はモノ酸のヒドロカルビル基の一般的性質に顕著に影響を与えない置換基の例は、限定はしな

いが次の通りである：

エーテル基（たとえばフェノキシ、ベンジルオキシ、メトキシ、ヘプトキシなどのようなヒドロカルビルオキシ、特に10個での炭素原子を有するアルコキシ基）：

オキソ基（たとえば主炭素鎖中の-O-結合）：チオ基（たとえば-S-、-S-S-）：ヒドロキシ基：

## カルボヒドロカルビルオキシ基（たとえば



スルホニル基（たとえば- $S-$ -ヒドロカルビル）：及び

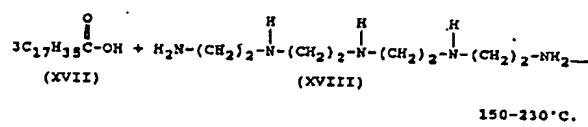


スルフィニル基（たとえば-S-ヒドロカルビル）である。

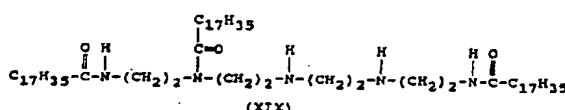
この例は単に例示であつて限定するものでなく、或る種の置換基の削除はその排除を必要とすることを意味しない。一般に、この種の置換基が存在する場合、実質的なヒドロカルビル基における各10個の炭素原子につき3個以上は存在せず、好ましくは各10個の炭素原子につき2個以上は存在しない。何故なら、置換基の個数は一般にヒドロカルビル特性及びこの基の性質に顯著に影響しないからである。しかしながら、

ヒドロカルビル基は一般に經濟的考慮から非炭化水素基を含まない。すなわち、これらは炭素原子と水素原子とのみからなる純粋なヒドロカルビル基である。

アミン反応体A-ⅰとモノ酸反応体A-ⅱとの間の本発明による成分-1反応体を生成させる反応は、例としてポリアミン化合物がテトラエチレンペニタミンを代表としあつモノ酸がイソステアリン酸を代表とする次の反応式によって例示することができる：



〔式中、「生成混合物」は次式(XIX)の化合物と少量、たとえば1モル%未樹、好ましくは0.5モル%未樹のイミダゾリンとの混合物を示す。たとえば式(YV)。



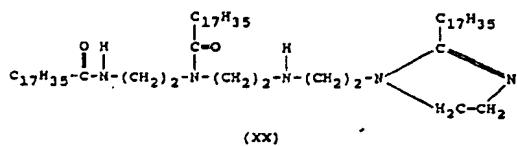
特表平3-502114(28)

特に好ましくは0.5モル%未満を意味する。

アミン化合物とモノ酸との反応は、たとえば2種の成分のそれぞれから少なくとも1種を混合すると共に反応混合物を少なくとも1個のアミド基の形成を達成するのに有効な温度及び時間にわたり加熱して行なわれる。水によるイミダゾール構造の加水分解は周知されており、さらに説明する必要はない。

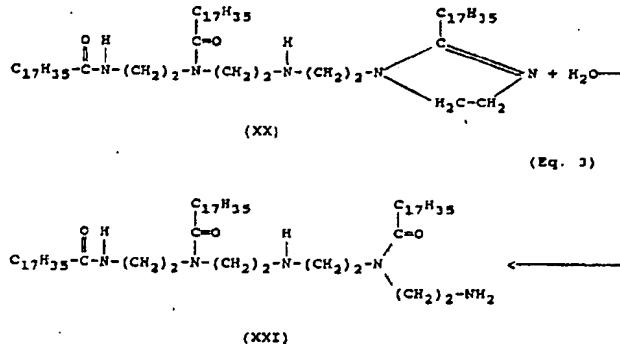
たとえば任意有効な反応温度及び時間用いられるが、この種の有効な反応温度は典型的には約100～約250°C(たとえば130～約220°C)、好ましくは約150～約230°C(たとえば150～約200°C)、特に好ましくは約170～約220°C(たとえば170～約200°C)の範囲であり、かつ有効な反応時間は典型的には約2～約30時間(たとえば3～約10時間)、好ましくは約4～約6時間の範囲であると考えられる。一般に、より低い反応温度はより長い時間を必要とする。

反応の進行は、アミドを形成する際の水の除去によって判定することができる。反応の初期部分において、水は120°C以下で極めて容易に除去される。反応が進行するにつれて温度を上昇させることにより縮合反応を完結させると共に、温度を反応の終り頃に上昇させることができる(たとえば160°C若しくはそれ以上まで)。縮合の際の水の除去は反応の逆行及び完結を判定する便利な方法であって、一般にもはや水が発生しなくなるまで継続される。水の除去に基づき、收率は一般に化学量論的である。より困難な反応において、少なくとも約95%の收率が一般に得られる。



によって示される種類を含む。

アミド化反応によりその場で生成される水の結果、全部ではないが殆どの構造(XX)のイミダゾリンは、次式にしたがって第一アミンまで意図的に加水分解される:



かくして、本発明の実施態様1における成分-1アミンは実質的にイミダゾリン含有構造を持たない。実質的にイミダゾリン含有構造を持たないという表現は、イミダゾリン環構造を有する化合物の5モル%未満、好ましくは1モル%未満、

たとえばトルエン若しくはキシレンのような溶剤を用いながら、反応は溶剤の使用なしに行なうことができ、好ましくは溶剤なしに行なう。

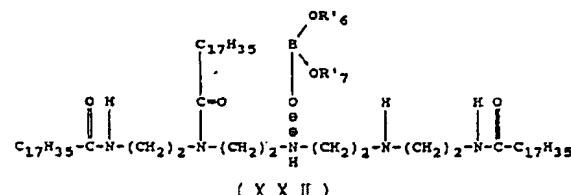
アミン反応体の反応性窒素をモノ酸反応体と反応させる程度は、(a)反応生成混合物に対し油溶性を付与し(モノ酸のヒドロカルビル基による)かつ実施態様3については(b)アミン反応体における全反応性アミン基を消費するのを回避するよう調節される。油溶性は、モノ酸のヒドロカルビル基の長さ及びアミン反応体における窒素の個数に依存する。

したがって、実施態様1及び2については油溶性を付与するのに充分なモノ酸を使用し、実施態様3については反応性アミン基の全部をアミド化する程より少なく使用する。たとえば実施態様3については、得られる成分-1生成混合物における少なくとも1個の反応性アミン基、すなわち第一若しくは第二アミン基が塩形成用に保持される。

一般に、ポリアミンとモノ酸反応体とを、典型的には反応混合物におけるポリアミン化合物1モル当たり約2～約10モル当量、たとえば約3～約10モル当量のモノ酸が反応するような量で接触させる。好ましくは、モノ酸反応体とポリアミン反応体とのモル比は約2.5～約7、特に好ましくは約3～約5モル当量のポリアミン反応体1モル当たりに反応させる酸であり、ただしそれより小モル量のモノ酸を全反応性アミン当量につき用いる。すなわち、例示した反応式2においては3モル当量のイソステアリン酸をテトラエチレンベンタミン(5個の反応性アミン当量を有する)の1モル当たりに反応さ

せ、縮合は2個の第一アミン基とテトラエチレンベンタミンの第二アミン基の1個とで生ずる。

反応体の純度は、所望消耗生成物の收率に影響を及ぼす。したがって、反応体の純度が高いほど、所望生成物の收率も高くなる。上記混合反応生成物を成分-1として使用することができる。しかしながら、成分-1反応生成物は窒素化合物、たとえば酸化窒素、ハロゲン化硝素、メタ硝酸塩、硝酸又はモノー、ジー若しくはトリーオ有機酸化合物、たとえばモノー、ジー、トリーアルキルポレートとのアダクト若しくは反応生成物として用いることもでき、ただし少なくとも1個の反応性アミン基を塩形成のため保持する。この種のアダクト若しくは誘導体は、たとえば限定はしないが次の構造式:



[式中、R'6及びR'7は独立してH又はヒドロカルビル、たとえばC1～約C10アルキルを示す]

により式XXIIを参照して示すことができる。

本発明による成分-1反応体化合物を個別化すべく使用しうるアルキルポレートの代表例はモノー、ジー及びトリーア

チルポレート：モノー、ジー及びトリーへキシリルポレートなどを包含する。糖素化アダクトは、単に成分-1物質と糖素化合物との混合物を好ましくは適する溶剤の存在下（好ましくはアルコール若しくは炭化水素溶剤の存在下）で加熱して製造することができる。溶剤の存在は必須でないが、使用する場合には反応性若しくは非反応性とすることができる。適する非反応性溶剤はベンゼン、トルエン、キシレンなどを包含する。適する反応性溶剤はイソブロバノール、ブタノール、ペントナールなどを包含する。好適には、反応温度は約100～約280°Cの程度、好ましくは約125～175°Cとすることができます。反応時間は臨界的でなく温度などに依存するが、所望量の水が除去されるまで約1～2時間から約15時間まで、たとえば2～6時間の範囲で変化することができる。本発明の範囲内で考えられる適する糖素化方法及び物質は当業界で周知されており、たとえば米国特許第4,382,006号、第4,400,284号、第4,529,528号、第4,594,171号及び第4,595,514号各公報に記載されており、その開示を参考のためここに引用する。

## B. 成分-2

成分-2は、少なくとも1個の遊離カルボキシル基を有するエステルである。より詳細には、この種のエステルは典型的には(i)アルカノールと、(ii)ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質との反応によって生成される。

## (i) アルカノール

アルカノールは構造式：

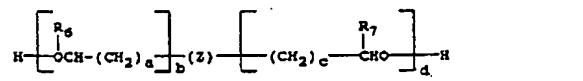
ルアミン及びその誘導体を示すことができる。

b若しくはdが1より大であれば、式(XXIII)はアルカノールのアルコキシリ化誘導体、たとえばエトキシリ化誘導体を現すことを意味する。さらに、R<sub>8</sub>を水素とする式(XXIII)により示されるジエタノールアミン若しくはその誘導体をヒドロカルビル置換されたコハク酸若しくは酸無水物と反応させる場合、これにより生成されるエステル生成混合物はエステルアミド成分を含有することができる。何故なら、ジエタノールアミンのNH基が酸若しくは無水物基との反応に利用しうるからである。同様に、R<sub>8</sub>がヒドロキシ置換アルキルである場合、R<sub>8</sub>のヒドロキシ置換基は酸若しくは酸無水物の反応に利用することができ、反応生成混合物はトリエステル成分を含有することができる。

上記にも拘らず、R<sub>8</sub>置換基と酸若しくは無水物との反応が可能であるが、これは容易ではない。したがって、アルカノールと反応させるべく用いる酸若しくは無水物のモル量は、典型的にはR<sub>8</sub>置換基が不活性であっても、たとえば酸とアルコールとのモル比が約1:1～約2:1となるように選択され、これについてモナー及びジーエステルに関して後記する。これらの例において、典型的にはエステル化合物の混合物が得られる。

好適アルカノールはチオアルカノールであって、その構造式(XXIII)においてZは-S-若しくは-S-S-であり、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は独立して水素、エチル若しくはメチルである。

特に好適なアルカノールは、構造式(XXIII)において



[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素、アルキル（好ましくは直鎖アルキル）、典型的にはC<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>アルキル、好ましくはC<sub>1</sub>～約C<sub>3</sub>アルキル、特に好ましくはC<sub>1</sub>～約C<sub>2</sub>アルキルを示し；(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、Zは-S-；-S-S-；-O-；及び>NR<sub>8</sub>から選択される結合基であり、ここでR<sub>8</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>2</sub>アルキル基、好ましくはC<sub>1</sub>～約C<sub>18</sub>（たとえばC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>）アルキル基又はC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロキシ置換アルキル基、好ましくは末端モノヒドロキシ置換アルキル基を示す]

によって示すことができる。好ましくは、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>は同一であり、(b)及び(d)により示される数値は(a)及び(c)により示される数値と同じであって、ビスーアルカノールをもたらす。

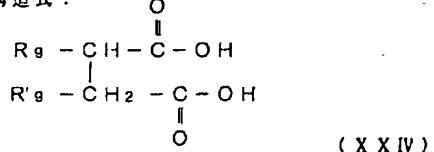
Zが-O-である場合、式(XXIII)はエチレングリコール及びその誘導体を示すことができる；Zが>NR<sub>8</sub>でありかつR<sub>8</sub>がヒドロキシ置換若しくは水素である場合、式(XXIII)はジエタノールアミン及びその誘導体を示すことができる；R<sub>8</sub>がモノヒドロキシ置換アルキル、たとえば-CH<sub>2</sub>-OHである場合、式(XXIII)はトリエタノール

(a)、(b)、(c)及び(d)がそれぞれ1若しくは2であり、R<sub>6</sub>が水素若しくはメチルであり、かつR<sub>7</sub>が水素、メチル若しくはエチメであり、Zが-S-であるようなチオアルカノールである。

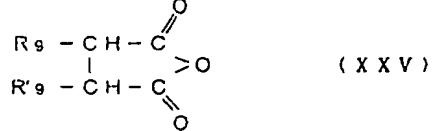
代表的アルカノールは2,2'-チオジエタノール；2,2'-ジチオジエタノール；3,3'-チオジプロバノール；3,3'-ジチオジプロバノール；チオビスエトキシエタノール；チオビスイソプロポキシソプロバノール；オキシビスエタノール；オキシビスエトキシエタノール；2,2'-ジエタノールメタンアミン；2,2'-ジエタノールエタンアミン；2,2',2''-トリエタノールアミン；2,2'-ジエタノールアミン；及びその混合物を包含する。

## (ii) ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質

アルカノールと反応させるヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質はそれぞれ構造式：



及び



特表平3-502114 (30)

[式中、 $R'g$  は  $C_1 \sim C_6$  脂肪族ヒドロカルビル（たとえばメチル）又は水素であり、 $Rg$  はヒドロカルビル基、好ましくは脂肪族ヒドロカルビル基、典型的には  $C_{12} \sim$  約  $C_{50}$  脂肪族炭化水素基（好ましくは直鎖脂肪族炭化水素基）好ましくは  $C_{16} \sim$  約  $C_{30}$  脂肪族炭化水素基、特に好ましくは  $C_{18} \sim$  約  $C_{22}$  脂肪族炭化水素基である]

によって示すことができる。脂肪族炭化水素基はシクロアルキルを包含するアルキル、好ましくは直鎖アルキル、アルケニル、好ましくは直鎖アルケニル、イソアルキル若しくはイソアルケニルとすることができる。

上記個数の炭素原子を有するオリゴマーも脂肪族ヒドロカルビル基として適しており、たとえばイソブテンのような  $C_2 \sim C_5$  モノオレフィンのオリゴマーも存在する。

$Rg$  ヒドロカルビル基は好ましくは未置換の炭化水素基であるが、これは成分-1のモノ酸反応体のRに關し説明したような置換基、たとえば塩基、臭素、硫黄、燐、窒素若しくは酸素を有することができ、これらは最終生成物の用途に影響を与えない。好適置換基は、無水2-オキタデセニルチオコハク酸を例とする硫黄である。

ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質は、モノ不飽和ジカルボン酸物質をオレフィン、オリゴマー、ポリオレフィン又はその炭化水素導体と当業界で知られた技術により反応させて製造することができる。

ジカルボン酸物質をここでは(i)モノ不饱和  $C_4 \sim C_{10}$ 、好ましくは  $C_4 \sim C_5$  ジカルボン酸と規定し、ここで(a)

カルボキシル基は職位（すなわち隣接する炭素原子に位置する）であり、かつ(b)前記隣接炭素原子の少なくとも一方、好ましくは両方は前記モノ不饱和の1部であり、又は(ii)上記(i)の無水物の誘導体又は上記(i)の  $C_1 \sim C_5$  アルコール誘導モノー若しくはジーエステルとして規定される。

この種の不饱和ジカルボン酸若しくは無水物及びそのエステルの例はフマル酸、イタコン酸、マレイン酸、無水マレイイン酸、クロルマレイイン酸、無水クロルマレイイン酸及びマレイイン酸ジメチルである。

オレフィン系炭化水素との反応に際し、ジカルボン酸物質のモノ不饱和は飽和される。たとえば、無水マレイイン酸はヒドロカルビル置換された無水コハク酸となり、これは好適なヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質である。

さらに、コハク酸は対応無水物の加水分解により容易に製造される。成分-2の酸/エステル化合物を製造する際に特に好適なものは  $C_{18} \sim C_{22}$  無水アルケニルコハク酸、たとえば無水オクタデセニルコハク酸である。反応が迅速となりかつ水が発生しないため、酸無水物が好適である。

ここで使用する場合、式(XXIII)のアルカノールのZが実際に不活性である場合、「モノエステル」若しくは「半エステル」という用語は、等モル割合の前記アルカノールとヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質とから製造される生成物を意味し、すなわち1個の遊離ヒドロキシル基が残存するのに対し、「ジエステル」という用語は2:1のモル比の酸物質とアルコールとを用いた生成物を意味し、ここでア

ルカノールの各ヒドロキシル基はヒドロカルビル置換若しくはポリオレフィン置換ジカルボン酸物質でエステル化される。

実施態様3で使用するにはジカルボン酸物質の性質は、酸物質反応体の少なくとも1個の末端カルボキシル基を残留させて、これを成分-1における反応性アミノ基を中和するために使用するよう選択される。ジエステルが生成される場合、2個の遊離カルボキシル基が残留し、すなわちそれぞれから1個生成する。

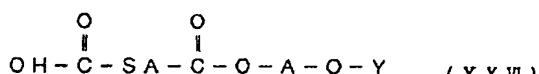
適量のヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質とアルカノールとを不活性有機溶剤若しくは希釈剤を用いて若しくは用いずに反応させると共に混合物を無水物のエステル化が完了するまで約50~150°Cにて加熱しつつ攪拌することにより、モノー及びジーエステルの生成が進行する。等モル量の各反応体は、典型的には主としてモノー（若しくは半-）エステルを生成し、さらに2モルのヒドロカルビル置換カルボン酸物質をアルカノール1モル当たりに反応させれば典型的にはジエステル物質を与える。さらに有用な生成物は、この種のモノー及びジーエステルの混合物、並びに  $>N Rg$  を構成する場合Z基の性質に応じて金属塩モノーエステル、ジーエステル、エステルアミド及び（又は）トリーエステルの混合物を包含する。

エステル化の反応時間は典型的には、約10~約30分間となるよう調節される。

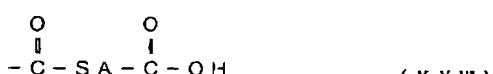
収率に関する限り、当モル比のアルカノール（Zが不活性である場合）とヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質との反

応は典型的には約80%のモノエステルと約20%のジエステルとを含有する生成物をもたらす。ジエステルは若干高い収率で生成され、ヒドロカルビル置換ジカルボン酸材料とアルコールとのモル比が2:1であれば、生成物の約90%がジエステルとなり、かつ約10%がモノエステルとなる。

上記に述べ、ヒドロカルビル置換コハク酸反応体とアルコール（Zが不活性である場合）とから誘導された得られるエステル生成物の単純化した構造式は、次のように示すことができる：



[式中、SAは末端カルボキシル基を排除した上記式(XXIV)により示されるヒドロカルビル置換コハク酸成分を示し、(A)は末端ヒドロキシル基を排除した式(XXIII)により示されるアルカノール成分を示し、Yは生成物が半エステルである場合には水素を示す] 及び式(XXVII)



[この場合、生成物はジエステルである]。

$Rg$  置換基の最小の炭素鎖長は、これを含有する液体組成物がより低温度まで冷却される際に溶液から出る増え長い逆鎖の傾向によって影響される。この種の置換基の不溶化はそ

## 実施態様3に関する塩形成

実施態様3の塩形成反応は、成分-2を成分-1と混合しかつ傅られた混合物を搅拌しながら典型的には約20～約100℃、好ましくは約40～約90℃、特に好ましくは約50～約80℃の温度まで典型的には約0.8～約4.0時間、好ましくは約0.3～約2.0時間、特に好ましくは約0.75～約1時間にわたり加熱して行なわれる。より高い反応温度は、より短い反応時間を必要とする。

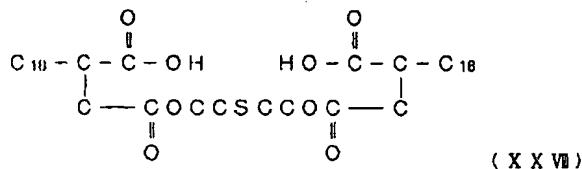
好ましくは、得られる生成混合物に未反応の成分-2をもたらす成分-1における反応性アミノ基（たとえば第二アミノ基）の個数に対し化学量論的過剰量の反応性カルボキシル基を与えるのに充分な成分-2を用いる。このような化学量論的過剰量の成分-2は典型的には約5～約1000%、好ましくは50～800%、特に好ましくは100～600%の範囲である。

したがって、実施態様3につき成分-2の任意の量を少なくとも或る程度の塩形成を生ぜしめるのに有効な成分-1と反応させうるが、この有効量は典型的には約1.05：1.0～約11：1、好ましくは約1.5：1～約9：1、特に好ましくは約2：1～約7：1のカルボキシル基（成分-2における）と反応性アミノ基（成分-1における）との当量比を与えるものと考えられる。

たとえば、成分-1が(a)3モルのイソステアリン酸を(b)1モルのテトラエチレンベンタミンと反応させた反応生成物（ここではISAT若しくはISAT-EPAと称するものを生成する）である実施態様3の好適面において、前

の凝集及びワックス結晶形成のための核部位の形成をもたらすので望ましくない。すなわち、選択される特定の最大置換基鎖長は、添加剤を露出させる温度経過に関し添加剤を用いる最終用途により影響される。

好適実施態様において、成分-2は次の構造式：



によって示すことができる。

上記したように成分-1は、実施態様2において成分-2と混合して使用することができる。たとえば、成分-1と成分-2とを別々に潤滑油組成物（これは他の添加剤をも含有することができる）に別々に添加することができ、或いは潤滑油組成物に添加する前に室温で予備混合することもできる。

成分-1と成分-2との任意の重量比をそれらが存在しない場合に較べ摩擦改質を向上させる混合物として用いうるが、この種の重量比は典型的には約0.2：1～約1.2：1、好ましくは約0.3：1～約0.7：1、特に好ましくは約0.4：1～約0.7：1（たとえば0.6：1～約0.7：1）の範囲で変化する。重量%基準における成分-1と成分-2との組合せ物の量につき、以下説明する。

記ISATに関する単純化した構造式は上記式(XIX)により示され、成分-2は上記式(XXVII)によって示される。好ましくは約4モルの成分-2を各1モルの成分-1と混合する。1モルの前記成分-2は2当量の反応性カルボキシル基を含有し、かつ1モルの前記成分-1は約2当量の反応性第二アミノ基を有するので、成分-2：成分-1の当量比はモル比に等しい。たとえば、4：1のモル比は約300%の化学量論過剰量の成分-2を示す。

或いはモル基準で現して、成分-2：成分-1の有効なモル比は典型的には約60：1～約0.33：1、好ましくは約10：1～約1：1、特に好ましくは約5：1～約2：1の範囲であって、上記化学量論的過剰量に依存する。

末反応の成分-1は分離静トルク(TS)に対する抑圧作用を有することが判明した。

したがって、トランスマッション製造業者の特定要求、すなわち最小の分離静トルク要求に応じ、塩形成に際し過剰量の成分-2を使用するのが有利である。

塩形成反応は溶剤の不存在下に行ないうるが、たとえばフタル酸ジヘキシル、トリデシルアルコール、アルキル化芳香族化合物、希釈油及びその混合物のような溶剤を用いることができる。

溶剤を用いない場合、得られる塩は粘性液となる。その結果、最終生成物を最終用途に適合した任意適する溶剤で希釈することが望ましい。

本発明の実施態様1～3の摩擦改質剤は、たとえば動力伝

達液、特に自動車トランスマッション液のような油性物質に、或いはこの種の液体を配合すべく使用する組成物及び濃厚物に混入しかつ溶解させ若しくは分散させて使用される。

本発明による摩擦改質剤は、これら摩擦改質剤を溶解させ若しくは分散させるベース油を用いた潤滑油組成物に主たる用途を有する。

すなわち、本発明の潤滑油組成物を製造する際使用するに適したベース油は火花点火及び圧縮点火内燃機関、たとえば自動車及びトラックエンジン、海上及び鉄道ディーゼルエンジンなどのクランクケース潤滑油として從来使用されているものを包含する。しかしながら、本発明の摩擦改質剤を、たとえば自動車トランスマッション液、トラクター液、万能トラクター液及び液圧流体、強力液圧流体、動力ステアリング液などの動力伝達液に從来用いられているベース油に使用して、特に有利な結果が得られる。

たとえば本発明の摩擦改質剤は、たとえばジカルボン酸とポリグリコールとアルコールとのアルキルエステル：ポリαオレフィン、アルキルベンゼン、環状の有機エステル、ポリシリコン油などの合成ベース油に好適に混入することができる。

天然ベース油は、その原料、たとえばパラフィン系、ナフテン系、混合パラフィン-ナフテン系などに關し、並びにその組成、たとえば蒸溜範囲、直留若しくは熱分解、ヒドロフライニング、溶剤抽出などに關し、広範に変化しうる鉱物潤滑油を包含する。

特表平3-502114 (32)

より詳細には、本発明の組成物に使用しうる天然潤滑油に最もよく原料は直留鉱物潤滑油又はパラフィン系、ナフテン系、アスファルト系又は複合ベース原料から誘導された蒸留油とすることができる、或いは所望に応じ各種の配合油、並びに残油、特にアスファルト成分が除去されたものを用いることもできる。石油は酸、アルカリ及び(又は)粘土、或いはたとえば塩化アルミニウムのような他の薬剤を用いる常法によって精製することができ、或いはたとえばフェノール、二酸化硫黄、フルフラール、ジクロロジエチルエーテル、ニトロベンゼン、クロトンアルデヒドなどの溶剤による溶剤抽出で製造された抽出油とすることもできる。

便利には、潤滑油ベース原料は典型的には100°Cにて約2.5~約12、好ましくは約3.5~約9の粘度を有する。

たとえば本発明の摩擦改質剤は、典型的には多量の潤滑油と、前記添加剤の不存在の場合に比べ向上した摩擦改質特性を付与するのに有効な典型的には少量の摩擦改質剤とからなる潤滑油組成物として使用することができる。選択された種類の潤滑油組成物の特定要求を満たすべく選択される他の機能用の添加剤を所望に応じ含ませることもできる。

本発明の摩擦改質剤は油溶性、適する溶剤を用いて油中に分散性、或いは油中に安定分散性である。用語としてここに用いる油溶性、溶解性又は安定分散性は、必ずしもこれら物質が全ゆる割合で油中に可溶性、分散性、混和性又は懸濁することを意味しない。しかしながら、これは混合物の各成分が油を用いる環境においてその目的とする効果を発揮する

のに充分な程度まで油中に溶解し或いは安定に分散しうることを意味する。さらに分散剤、摩擦改質剤及び(又は)他の添加剤の混入は、所望に応じ一層多量の特定反応生成物を混入を可能にする。

本発明の摩擦改質剤は、任意便利な方法で潤滑油に混入することができる。たとえば、これらは典型的にはたとえばドデシルベンゼン若しくはナフテン系ベース原料のような適する溶剤により所望レベルの濃度にて油中に分散させ或いは溶解させて油に直接添加することができる。このような配合は60~100°Cの高められた温度で行なうことができる。

本発明の添加剤のための潤滑油ベース原料は、典型的には潤滑油組成物(すなわち配合物)を形成すべく添加剤を混入することにより選択された機能を果すのに適する。

上記したように、本発明の添加剤と組合せて使用するのに適した1種の広範な種類の潤滑油組成物はトラクター液、万能トラクター油などである。

本発明による添加剤の利点は、自動車トランクション液として使用するのに適した潤滑油に使用した場合に特に顯著である。

たとえば自動車トランクション液のような動力伝達液、並びに一般に潤滑油は典型的にはそれぞれこれらの化学的及び(又は)物理的性質を向上させるのに有用な多数の添加剤から配合される。添加剤は一般に、鉛油又は或る程度の他のベース油が存在する濃厚物パッケージとして販売される。自動車トランクション液における鉛物潤滑油は典型的には

精製炭化水素油、又は特定の液体の粘度要求に応じて選択された精製炭化水素油の混合物であるが、典型的には100°Cにて2.5~9、たとえば3.5~9cstの粘度範囲を有する。適するベース油は広範な種類の軽質炭化水素鉛油、たとえばナフテン系ベース油、パラフィン系ベース油及びその混合物を包含する。

この種のパッケージ、並びに最終組成物に存在させうる代表的添加剤は粘度指数(V.I.)向上剤、腐食阻止剤、酸化阻止剝、摩擦改質剤、潤滑油流動向上剤、分散剤、消泡剤、耐摩耗剤、洗剤、金属錯止剤及びシール潤滑剤を包含する。

粘度改質剤は、高温及び低温操作性を潤滑油に付与すると共に低温度にて許容しうる粘度若しくは流动性を示す。

V.I. 向上剤は一般に高分子量の炭化水素重合体又はより好ましくはポリエステルである。V.I. 向上剤はさらに、たとえば分散特性を付加するような他の性質若しくは機能を含むよう誘導化することもできる。

一般に、これら油溶性V.I. 重合体は、ゲル透過クロマトグラフィー又は膜浸透圧法により測定して103~106、好ましくは104~106、たとえば20,000~250,000の範囲の数平均分子量を有する。

適する炭化水素重合体の例はC<sub>2</sub>~C<sub>30</sub>、たとえばC<sub>2</sub>~C<sub>8</sub>オレフィンの単独重合体、並びに2種若しくはそれ以上のこれら単独体の共重合体を包含し、前記オレフィンはα-オレフィン及び内部オレフィンの両者を包含し、直鎖若しくは分枝鎖の脂肪族、芳香族、アルキル-芳香族、脂環式な

どとすることができる。しばしば、これらはエチレンとC<sub>3</sub>~C<sub>30</sub>オレフィンとの共重合体、特に好ましくはエチレンとプロピレンとの共重合体である。他の重合体、たとえばポリイソブチレン、C<sub>6</sub>及び高級α-オレフィンの単独重合体及び共重合体、アタクチックポリプロピレン、水素化重合体及び共重合体、並びにスチレンとたとえばイソブレン及び(又は)アタジエンとの三元重合体など他の重合体も使用することができる。

より詳細には、本発明における粘度指数向上剤として適した他の炭化水素重合体は、水素化若しくは部分水素化単独重合体、並びに共役ジエン及び(又は)モノビニル芳香族化合物と必要に応じα-オレフィン若しくは低級アルケン、たとえばC<sub>3</sub>~C<sub>18</sub>α-オレフィン若しくは低級アルケンとのランダム、テーバード、星型若しくはプロック共重合体(三元重合体、四元重合体などを包含する)として記載しうるものを作成する。共役ジエンはイソブレン、フタジエン、2,3-ジメチルアタジエン、ビペリレン及び(又は)その混合物、たとえばイソブレン及びアタジエンを包含する。モノビニル芳香族化合物はビニルジー若しくはポリ-芳香族化合物、たとえばビニルナフタレン或いはビニルモノマー、ジー及び(又は)ポリ-芳香族化合物の混合物を包含するが、好ましくはたとえばスチレン又はスチレンのα-炭素原子が置換されたアルキル化スチレン、たとえばα-メチルスチレン或いは環炭素で置換された、たとえばO-、m-、p-メチルスチレン、エチルスチレン、プロピルスチレン、イソプロピルスチレン、

特表平3-502114 (33)

典型的には、星型重合体における脂肪族不飽和の少なくとも約80%及び芳香族不飽和の約20%が水素化より還元される。

この種の水素化重合体若しくは共重合体を開示した特許の代表例は次のものを包含する：米国特許第3,312,621号、第3,318,813号、第3,630,905号、第3,668,125号、第3,763,044号、第3,795,615号、第3,835,053号、第3,838,049号、第3,965,019号、第4,358,565号及び第4,557,849号。その開示を参考のためここに引用する。

重合体は、たとえば混練、押出、酸化若しくは熱分解によって分子量を減成することができ、さらに酸化して酸素を含有することもできる。さらに、たとえばエチレン-アロビレンと活性モノマー、たとえば無水マレイン酸との後グラフト化共重合体のような誘導化された重合体も包含され、さらにアルコール若しくはアミン、たとえばアルキレンポリアミン若しくはヒドロキシアミンと反応させることができ（たとえば米国特許第4,083,794号、第4,160,739号、第4,137,189号参照）、或いはエチレンとアロビレンとの共重合体を窒素化合物と反応させ或いはグラフト化させたものも包含され、たとえば米国特許第4,069,056号、第4,068,058号、第4,146,489号及び第4,149,984号に示されている。

適する炭化水素重合体は15～90重量%のエチレン、好ましくは30～80重量%のエチレンと10～85重量%、好ましくは20～70重量%の1種若しくはそれ以上のC<sub>3</sub>～C<sub>20</sub>、好ましくはC<sub>3</sub>～C<sub>18</sub>、よ好ましくはC<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のα-オレフィンとを含有するエチレン共重合体である。必須ではないが、こ

アチルスチレン、イソアチルスチレン、マークチルスチレン（たとえばローマークチルスチレン）のようなモノビニルモノ芳香族化合物である。さらにビニルキシレン、メチルエチルスチレン及びエチルビニルスチレンも包含される。これらランダム、テーバード及びアロック共重合体に適宜含まれるα-オレフィン及び低級アルケンは好ましくはエチレン、アロビレン、アテン、エチレン-アロビレン共重合体、イソブチレン、並びにその重合体及び共重合体を包含する。当業界で知られているように、これらランダム、テーバード及びアロック共重合体は比較的少量、すなわち約5モル%未満の他の共重合しうる単體、たとえばビニルビリジン、ビニルラクタム、メタクリレート、塩化ビニル、塩化ビニリデン、酢酸ビニル、ステアリン酸ビニルなどを含むことができる。

特定例はアタジエン及び（又は）イソブレンのランダム重合体、並びにイソブレン及び（又は）アタジエンとスチレンとの重合体を包含する。典型的なアロック共重合体はポリスチレン-ポリイソブレン、ポリスチレン-ポリアタジエン、ポリスチレン-ポリエチレン、ポリスチレン-エチレンアロビレン共重合体、ポリビニルシクロヘキサン-水素化ポリイソブレン及びポリビニルシクロヘキサン-水素化ポリアタジエンを包含する。テーバード重合体は当業界で知られた方法により製造される上記単體の重合体を包含する。星型重合体は典型的には核とこの核に結合した高分子アームとからなり、これらアームは前記共役ジエン及び（又は）モノビニル芳香族単體の単独重合体若しくは共重合体からなっている。

の種の共重合体は、好ましくはX線及び示差走査型熱量計法により決定して25重量%未満の結晶度を有する。エチレンとアロビレンとの共重合体が最も好適である。共重合体を形成すべく或いはエチレンとアロビレンと組合せて使用することにより三元重合体、四元重合体などを生成させるべくアロビレンの代りに使用するのに適した他のα-オレフィンは1-アテン、1-ベンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセンなど；さらに分枝鎖α-オレフィン、たとえば4-メチル-1-ベンテン、4-メチル-1-ヘキセン、5-メチルベンテン-1、4,4-ジメチル-1-ベンテン及び6-メチル-1-アテン-1など、並びにその混合物を包含する。

エチレンと前記C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>のα-オレフィンと非共役ジオレフィン若しくはこれらジオレフィンの混合物との三元重合体、四元重合体なども使用することができる。非共役ジオレフィンの量は一般に、存在するエチレン及びα-オレフィンの全量に対し約0.5～20モル%、好ましくは約1～約7モル%の範囲である。

好適V.I.向上剤はポリエステル、特に好ましくはエチレン系不飽和C<sub>3</sub>～C<sub>8</sub>モノマー及びジカルボン酸、たとえばメタクリル酸及びアクリル酸、マレイン酸、無水マレイン酸、フマル酸などのポリエステルである。

使用しうる不飽和エステルの例は、少なくとも1個の炭素原子、好ましくは12～20個の炭素原子を有する脂肪族飽和モノアルコールのエステル、たとえばアクリル酸デシル、メタ-

クリル酸ラウリル、メタクリル酸セチル、メタクリル酸ステアリルなど、並びにその混合物を包含する。

他のエステルはC<sub>2</sub>～C<sub>20</sub>脂肪酸若しくはモノカルボン酸のビニルアルコールエステル、好ましくは飽和エステル、たとえば酢酸ビニル、ラウリン酸ビニル、バルミチン酸ビニル、ステアリン酸ビニル、オレイン酸ビニルなど、並びにその混合物を包含する。ビニルアルコールエステルと不飽和酸エステルとの共重合体、たとえば酢酸ビニルとフマル酸ジアルキルとの共重合体も使用することができる。

エステルは、さらに他の不飽和單量体、たとえばオレフィン類、たとえば不飽和エステル1モル当たり或いは不飽和酸若しくは酸無水物1モル当たり0.2～5モルのC<sub>2</sub>～C<sub>20</sub>脂肪族若しくは芳香族オレフィンと共に重合させ、次いでエステル化することもできる。たとえば、ステレンと無水マレイン酸との共重合体をアルコール及びアミンでエステル化することも知られている（たとえば米国特許第3,702,300号参照）。

この種のエステル重合体は、重合しうる不飽和窒素含有單量体とグラフト化させ或いはエステル共重合をさせてV.I.向上剤に分散性を付与することもできる。分散性を付与するのに適した不飽和窒素含有モノマーの例は4～20個の炭素原子を有するもの、たとえばアミノ置換オレフィン、たとえばローマークエチルアミノエチル）ステレン；重合しうるエチレン系不飽和置換基を有する塩基性窒素含有複素環化合物、たとえばビニルビリジン、並びにビニルアルキルビリジン、たとえば2-ビニル-5-エチルビリジン、2-メチル-5-

特表平3-502114(34)

行なうことができる。

他の適する腐蝕阻止剤は銅腐蝕阻止剤を包含し、1, 3, 4-チアジアゾール、たとえばC<sub>2</sub> ~ C<sub>3</sub>のアルキル、アリール、シクロアルキル、アラルキル及びアルカリールモノマー、ジー、トリー若しくはテトラー又はチオ-ニ置換誘導体のヒドロカルビル-チオニ置換誘導体を包含する。

この種の物質の代表例は2, 5-ビス(オクチルチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(オクチルジチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(オクチルトリチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(オクチルテトラチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(ノニルチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(ドデシルジチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；2-ドデシルジチオ-5-フェニルジチオ-1, 3, 4-チアジアゾール；2, 5-ビス(シクロヘキシルジチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール；並びにその混合物を包含する。

好適な銅腐蝕阻止剤は、たとえば米国特許第2,719,125号、第2,719,126号及び第3,087,932号に記載されたようないし、3, 4-チアジアゾールの誘導体であり、特に好適な化合物は2, 5-ビス(ヒオクチルジチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール(アモコ150として市販されている)、及び2, 5-ビス(ヒノニルジチオ)-1, 3, 4-チアジアゾール(アモコ158として市販されている)である。

この種の物質の製造は、さらに米国特許第2,719,125号、

-ビニルビリジン、2-ビニル-ビリジン、3-ビニル-ビリジン、4-ビニル-ビリジン、3-メチル-5-ビニル-ビリジン、4-メチル-2-ビニル-ビリジン、4-エチル-2-ビニル-ビリジン及び2-アチル-5-ビニル-ビリジンなどを包含する。

N-ビニルラクタムも適してあり、たとえばN-ビニルビロリドン若しくはN-ビニルビペリドンがある。

ビニルビロリドンが好適であり、たとえばN-ビニルビロリドン、N-(1-メチル-ビニル)ビロリドン、N-ビニル-5-メチルビロリドン、N-ビニル-3, 3-ジメチルビロリドン、N-ビニル-5-エチルビロリドンなどを例とする。

腐蝕防止剤としても知られる腐蝕阻止剤は、液体と接触する非鉄金属自身の劣化を減少させる。腐蝕阻止剤の例はホスホスルフル化炭化水素、並びにホスホスルフル化炭化水素とアルカリ土類金属酸化物若しくは水酸化物との好ましくはアルキル化フェノール若しくはアルキルフェノールチオエーテルの存在下における、さらに好ましくは二酸化炭素の存在下における反応により得られる生成物である。上記したように、ホスホスルフル化炭化水素は、適する炭化水素、たとえばテルペン、C<sub>2</sub> ~ C<sub>6</sub>オレフィン重合体の重質石油フラクション、たとえばポリイソブチレンを5~30重量%の量のスルフィドと0.5~15時間にわたり150~400°Fの範囲の温度で反応させて製造される。ホスホスルフル化炭化水素の中和は、米国特許第2,969,324号公報に教示されたように

第2,719,126号、第3,087,932号及び第4,410,436号に記載されており、その開示を参考のためここに引用する。

酸化阻止剤は醸油が使用中に劣化する傾向を減少させ、この劣化はたとえばスラッジ及び金属表面上のワニス沈着物のような酸化生成物により及び粘度上昇により証明される。この種の酸化阻止剤は好ましくはC<sub>5</sub> ~ C<sub>12</sub>アルキル側鎖を有するアルキルフェノールチオエーテルのアルカリ土類金属塩を包含し、たとえばカルシウムノニルフェノールスルフィド、バリウムヒオクチルフェノールスルフィド、アリールアミン、たとえばジオクチルフェニルアミン、フェニル-α-ナフチルアミン、ホスホスルフル化され又はスルフル化された炭化水素などを包含する。

摩擦改質剤はトランスマッショング製造業者により要求される過切な摩擦特性をATFに付与するよう作用し、ここに説明した本発明の添加剤は唯一の摩擦改質剤でないにせよ少なくとも主たる摩擦改質剤として使用することを意図することには目されよう。

本発明の添加剤と組合せて使用しうる適する摩擦改質剤の代表例はたとえば脂肪酸エステル、アミドアミド及びN-脂肪族ジエタノールアミンを開示した米国特許第3,933,659号；ポリイソテニル無水コハク酸-アミノアルカノールのモリブデン錯体を記載した米国特許第4,176,074号；二量化脂肪酸のグリセリンエステルを開示した米国特許第4,105,571号；アルカンホスホン酸塩を開示した米国特許第3,779,928号；アルカンホスホン酸塩を開示した米国特許第3,778,928号；

ホスホネートとオレアミドとの反応生成物を開示した米国特許第3,778,375号；S-カルボキシアルキレンヒドロカルビルスクリナミン酸及びその混合物を開示した米国特許第3,852,205号；N-(ヒドロキシアルキル)アルケニルスクリナミン酸若しくはスクリシンイミドを開示した米国特許第3,879,306号；ジー(低級アルキル)ホスファイトとエポキシドとの反応生成物を開示した米国特許第3,932,290号；並びにホスホスルフル化N-(ヒドロキシアルキル)アルケニルスクリシンイミドの酸化アルキレンアダクトを開示した米国特許第4,028,258号にも見られ、これらは全て自動車トランスミッション液に摩擦改質剤として使用される。上記特許の開示を参考のためここに引用する。

上記したように、補助摩擦改質剤を使用する必要がなく、実際には本発明の組成物から排除しうることが本発明の重要な利点である。

分散剤は使用の際の酸化から生ずる油不溶物を液体中に懸濁状態で維持し、したがってスラッジ凝集及び沈殿を防止する。適する分散剤は、たとえば灰分生成型若しくは無灰分型の分散剤を包含し、後者の種類が好適である。

灰分生成分散剤はスルホン酸、カルボン酸若しくは有機炭酸によるアルカリ金属若しくはアルカリ土類金属の油溶性の中性及び堿基性塩を例とし、前記有機炭酸は少なくとも1個の直接的炭素-炭結合を特徴とし、たとえばオレフィン重合体(たとえば1,000の分子量を有するポリイソブテン)をたとえば三塩化塩、七硫化塩、五硫化塩、三塩化塩及び硫黄、

特表平3-502114(35)

白色塩及びハロゲン化硫黄又は塩化ホスホロチオングリ酸のようなホスホリル化剤で処理して製造される。

「堿基性塩」という用語は、金属が有機酸基よりも化学量論上多量に存在する金属塩を意味するよう使用される。堿基性塩を製造するための一般的に用いられる方法は、酸の鉱油溶液を化学量論的過剰の金属中和剤、たとえば金属酸化物、水酸化物、炭酸塩、重碳酸塩若しくは硫酸化物と共に約50°Cの温度で加熱しあつ得られた物質を濾過することを含む。大過剰の金属の混入を促進するための中和工程における「促進剤」の使用も知られている。促進剤として有用な化合物の例はフェノール系物質、たとえばフェノール、ナフトール、アルキルフェノール、チオフェノール、硫化アルキルフェノール及びホルムアルデヒドとフェノール系物質との縮合生成物：アルコール類、たとえばメタノール、2-アプロバノール、オクチルアルコール、セロソルブ、エチレングリコール、ステアリルアルコール及びシクロヘキシルアルコール；並びにアミン類、たとえばアニリン、フェニレンジアミン、フェニル-β-ナフチルアミン及びドデシルアミンを包含する。堿基性塩を製造するための特に効果的な方法は、酸を過剰の堿基性アルカリ土類金属中和剤及び少なくとも1種のアルコール促進剤と混合しあつこの混合物をたとえば60～200°Cの高められた温度で炭酸化することからなっている。この種の物質は、洗剤及び金属錯止剤に関連して上記した通りである。

最も好適な灰分生成洗剤はスルホン酸の金属塩、アルキルフェノール、碘化アルキルフェノール、アルキルサリチレー

ト、ナフテネート及びその他の油溶性モノー及びジーカルボン酸を包含する。高堿基性（すなわち過堿基性）の金属塩、たとえば高堿基性アルカリ土類金属スルホン酸塩（特にCa及びMg塩）が、しばしば洗剤として使用される。これらは一般に、油溶性スルホネート若しくはアルカリースルホン酸と存在するスルホン酸の完全中和に要するよりも過剰のアルカリ土類金属化合物とからなる混合物を加熱し、次いで過剰の金属を二酸化炭素と反応させて所望の過堿基性を与えることにより分散した放散塩錠体を形成することにより製造される。スルホン酸は、典型的にはアルキル置換芳香族炭化水素、たとえば蒸留及び（又は）抽出による或いは芳香族炭化水素のアルキル化による石油の分別によって得られたもの、たとえばベンゼン、トルエン、キシレン、ナフタレン、ジフェニル及びハロゲン誘導体、たとえばクロルベンゼン、クロルトルエン及びクロルナフタレンをアルキル化して得られたものをスルホン化して得られる。アルキル化は触媒の存在下に約3～30個より多い炭素原子を有するアルキル化剤、たとえばハロパラフィン、パラフィンの脱水素によって得られるオレフィン、ポリオレフィン、たとえばエチレン、アロビレンなどからの重合体を用いて行なうことができる。アルカリースルホネートは一般に約9～約70個若しくはそれ以上の炭素原子、好ましくは約16～約50個の炭素原子をアルキル置換芳香族基1個当たりに有する。

これらアルカリースルホン酸を中和してスルホネートを生成させる際に使用しうるアルカリ土類金属化合物はマグネ

シウム、カルシウム及びバリウムの酸化物及び水酸化物、アルコキシド、炭酸塩、カルボン酸塩、硫酸物、ヒドロスルフィド、硝酸塩、硼酸塩及びエーテルを包含する。その例は酸化カルシウム、水酸化カルシウム、酢酸マグネシウム及び硼酸マグネシウムである。上記したように、アルカリ土類金属化合物は、アルカリースルホン酸の完全中和に要する過剰の量で使用される。一般に、その量は約100～約220%であるが、完全中和に要する化学量論量の金属の少なくとも125%を使用するのが好適である。

堿基性アルカリ土類金属アルカリースルホネートの各種の他の製造が、たとえば米国特許第3,150,088号及び第3,150,089号公報に記載されたように知られており、ここで過堿基性は炭化水素溶剤／希釈剤油におけるアルカリースルホネートによるアルコキシド-カーボネート錠体の加水分解により達成される。

本発明に関し使用するのに好適な分散剤である無灰分分散剤は、その樹脂に応じ分散剤が燃焼に際し不揮発性物質、たとえば酸化銀若しくは五酸化磷を生成するという事実にも拘らずこのように呼ばれる。しかしながら、これらは一般に金属を含有せず、したがって燃焼に際し金属含有灰分を生成しない。無灰分分散剤の多くの種類が当業界で知られており、そのいずれも本発明の耐溶剤物に使用するのに適している。下記するものがその例である：

1. 少なくとも約30個、好ましくは少なくとも約50個の炭素原子を有するカルボン酸（若しくはその誘導体）と窒素

含有化合物、たとえばアミン、有機ヒドロキシ化合物、たとえばフェノール及びアルコール及び（又は）堿基性有機物質との反応生成物。これら「カルボキシル分散剤」の例は、たとえば英國特許第1,306,529号、並びに米国特許第3,272,746号、第3,341,542号、第3,454,607号及び第4,854,403号各公報に記載されている。

より詳細には、窒素-若しくはエステル-含有の無灰分分散剤は、長鎖ヒドロカルビル置換モノー及びジーカルボン酸若しくは無水物又はそのエステル誘導体の油溶性塩、アミド、イミド、オキザソリン及びエステル又はその混合物よりなる群から選択されるものを含み、ここで前記長鎖ヒドロカルビル基は典型的にはC<sub>2</sub>～C<sub>10</sub>、たとえばC<sub>2</sub>～C<sub>5</sub>モノオレフィンの重合体であって、この重合体は約700～5000の数平均分子量を有する。

分散剤を作成するため使用しうる長鎖ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質は長鎖炭化水素重合体、一般にポリオレフィンと（i）モノ不飽和C<sub>4</sub>～C<sub>10</sub>ジカルボン酸【ここで（a）カルボキシル基は隣位（すなわち隣接炭素原子に位置する）であり、かつ（b）前記隣接炭素原子の少なくとも一方、好ましくは両方は前記モノ不飽和の1部である】との、或いは（ii）たとえば無水物のような上記（i）の誘導体又は上記（i）のC<sub>1</sub>～C<sub>5</sub>アルコール誘導モノー若しくはジーエステルとの反応生成物を包含する。炭化水素重合体との反応に際し、ジカルボン酸物質のモノー不飽和は飽和される。たとえば、無水マレイン酸はヒドロカルビル置換された無水

特表平3-502114 (36)

コハク酸となる。

典型的には、約 0.7～約 4.0 (たとえば 0.8～2.6)、好ましくは約 1.0～約 2.0、特に好ましくは約 1.1～約 1.7 モルの前記不飽和 C<sub>4</sub>～C<sub>10</sub> ジカルボン酸物質を、添加ポリオレフィン 1 モル当たりに反応器に添加する。

一般に、必ずしも全部のポリオレフィンが不飽和酸若しくは誘導体と反応せず、ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質は未反応ポリオレフィンを含有する。この未反応ポリオレフィンは典型的には反応混合物から除去されず (何故なら、この種の除去は困難であり、産業上不可能であるであるから)、かつ未反応のモノ不飽和 C<sub>4</sub>～C<sub>10</sub> ジカルボン酸物質がストリッピングされた生成混合物をその後のアミン若しくはアルコールとの反応に後記するように使用して分散剤を作成する。

反応に添加される (反応を受けても受けなくても) ポリオレフィン 1 モル当たりに反応したジカルボン酸、無水物若しくはエステルの平均モル数の特性化を、ここでは官能価として規定する。この官能価は、(i) 水酸化カリウムを用いる得られた生成混合物の鹹化度の測定、及び(ii) 当業界で周知された技術を用いる添加重合体の数平均分子量に基づいている。官能価は、単に得られた生成混合物に関し規定される。したがって、得られた生成混合物に含有される反応ポリオレフィンの量をその後に変更し、すなわち当業界で知られた技術により増加させ若しくは減少させうるが、この種の変更は上記官能価を変化させない。「ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質」という用語は、この種の変更を受けても受けなく

ても生成混合物を意味することを放棄する。

したがって、ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質の官能価は典型的には少なくとも約 0.5、好ましくは少なくとも約 1.8、特に好ましくは少なくとも約 0.9 であり、典型的には約 0.5～約 2.8 (たとえば 0.6～2)、好ましくは約 0.8～約 1.4、特に好ましくは約 0.9～約 1.3 の範囲である。

この種の不飽和モノー及びジーカルボン酸若しくは無水物及びそのエステルの例はフマル酸、イタコン酸、マレイン酸、無水マレイン酸、クロルマレイン酸、無水クロルマレイン酸、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、桂皮酸などである。

不飽和ジカルボン酸若しくはその誘導体と反応させるのに好適なオレフィン重合体は、多モル量の C<sub>2</sub>～C<sub>10</sub>、たとえば C<sub>2</sub>～C<sub>5</sub> モノオレフィンを含む重合体である。この種のオレフィンはエチレン、プロピレン、ブチレン、イソブチレン、ベンテン、オクテン-1、スチレンなどを包含する。重合体はたとえばポリイソブチレンのような単独重合体、並びにこの種のオレフィン類の 2 種若しくはそれ以上の共重合体、たとえばエチレンとプロピレンとの共重合体；ブチレンとイソブチレンとの共重合体；プロピレンとイソブチレンとの共重合体などができる。他の共重合体は、少モル量の共重合体モノマー、たとえば 1～10 モル % が C<sub>4</sub>～C<sub>18</sub> 非共役ジオレフィンであるもの、たとえばイソブチレンとブタジエンとの共重合体又はエチレンとプロピレンと 1,4-ヘキサジエンとの共重合体などを包含する。

或る種の場合、オレフィン重合体は完全に飽和されてもよ

く、たとえば分子量を調節するための調節剤として水素を用いるチーグラー・ナッタ合成により作成されたエチレン-アロビレン共重合体がある。

分散剤中に使用されるオレフィン重合体は一般に約 700～約 5,000、より一般に約 800～約 3000 の範囲の数平均分子量を有する。特に有用なオレフィン重合体は約 900～約 2500 の範囲の数平均分子量を有すると共に、重合体連結 1 個当たりほぼ 1 個の末端二重結合を有する。高能力分散剤添加物に特に有用な出発物質はポリイソブチレンである。この種の重合体に関する数平均分子量は、幾つかの公知技術で決定することができる。この種の決定の便利な方法はゲル透過クロマトグラフィー (GPC) であって、この方法はさらに分子量分布の情報をも与える [W. W. ヤウ、J. J. カークランド及び D. D. ブライ、「モーテーン・サイズ・エクスクルージョン・リキッド・クロマトグラフィー」、ジョン・ウィリー・アンド・サンズ社、ニューヨーク (1979) 参照]。

オレフィン重合体を C<sub>4</sub>～C<sub>10</sub> 不飽和ジカルボン酸、無水物若しくはエステルと反応させる方法は当業界で知られている。たとえば、オレフィン重合体とジカルボン酸若しくは無水物とを樹に一緒に米国特許第 3,361,373 号及び第 3,401,118 号公報に開示されたように加熱して熱「エン」反応を生ぜしめる。或いは、オレフィン重合体を先ず最初にハロゲン化し、たとえば重合体の重錠に対し約 1～8 重量 %、好ましくは 3～7 重量 % 塩素若しくは臭素まで塩素化若しくは臭素化することができ、その際塩素若しくは臭素をポリオレフィン中に

60～250°C、たとえば 120～160°C の温度にて約 0.5～10 時間、好ましくは 1～7 時間にわたり通過される。次いで、ハロゲン化された重合体を充分量の不飽和酸若しくは誘導体と 100～250°C、一般に約 180～235°C にて約 0.5～10 時間、たとえば 3～8 時間にわたり反応させることができ、かくして得られた生成物は所望モル数の不飽和酸若しくは誘導体をハロゲン化重合体 1 モル当たりに含有する。この一般的種類の方法は米国特許第 3,087,936 号、第 3,172,892 号、第 3,272,746 号などに教示されている。

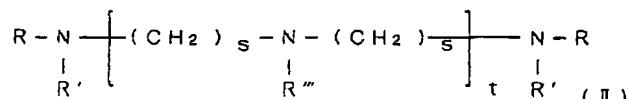
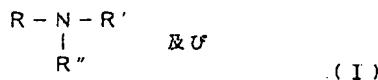
或いは、オレフィン重合体と不飽和酸若しくは誘導体とを混合すると共に、加熱しながら塩素を熱物質に添加する。この種類の方法は米国特許第 3,215,707 号、第 3,231,587 号、第 3,912,764 号、第 4,110,349 号及び英国特許第 1,440,219 号各公報に開示されている。

ハロゲンを使用することにより、ポリオレフィン (たとえばポリイソブチレン) の約 65～95 重量 % が一般にジカルボン酸若しくは誘導体と反応する。ハロゲン若しくは触媒の使用なしに熱反応を行なうと、一般にポリイソブチレンの約 50～75 重量 % しか反応しない。塩素化は反応性を増大させるのに役立つ。

少なくとも 1 種のヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質を少なくとも 1 種のアミン、アルコール (ポリオールを包含する)、アミノアルコールなどと混合して、分散剤添加物を生成させる。酸物質をさらに反応させる (たとえば中和する) 場合、一般に多達割合の少なくとも 50% の酸生成単位～全酸

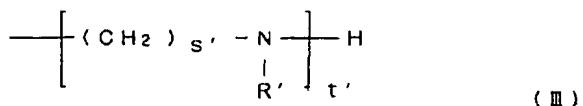
単位が反応する。

ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質を中和するための求核性反応体として有用なアミン化合物はモノー及び好ましくはポリアミン、特に好ましくは約2~60個、好ましくは2~40個（たとえば3~20個）の全炭素原子と約1~12個、好ましくは3~12個、特に好ましくは3~9個の窒素原子とを分子内に有するポリアルキレンポリアミンを包含する。これらアミンはヒドロカルビルアミンとることができ、或いは他の基、たとえばヒドロキシ基、アルコキシ基、アミド基、ニトリル、イミダゾリン基などを含むヒドロカルビルアミンとすることもできる。1~6個のヒドロキシ基、好ましくは1~3個のヒドロキシ基を有するヒドロキシリルアミンが特に有用である。好適アミンは脂肪族飽和アミンであって、一般式：



[式中、R、R'、R''及びR'''は独立して水素：C<sub>1</sub>~C<sub>2</sub>直鎖若しくは分枝鎖アルキル基；C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルコキシC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基；C<sub>2</sub>~C<sub>12</sub>ヒドロキシアミノアルキレン基；及びC<sub>1</sub>~C<sub>12</sub>アルキルアミノC<sub>2</sub>~C<sub>6</sub>アルキレン基よりなる群から選択され；さらにR'''は

式：



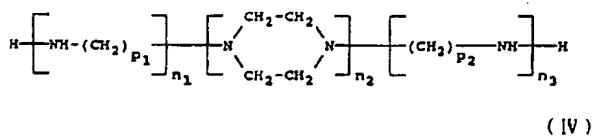
の基を含むことでもでき、ここでR'は上記の意味を有し、S及びs'は同一若しくは異なる2~6、好ましくは2~4の数値とすることができ、t及びt'は同一若しくは異なる0~10、好ましくは2~7、特に好ましくは約3~7の数値とすることができ、ただしtとt'との合計は15以下である]

のものを包含する。容易な反応を確保するにはR、R'、R''、R'''、s、s'、t及びt'を典型的には少なくとも1個の第一若しくは第二アミン基、好ましくは少なくとも2個の第一若しくは第二アミン基を式II及びIIIの化合物に与えるのに充分となるよう選択するのが好適である。これは、前記R、R'、R''若しくはR'''基の少なくとも1種を水素として選択し或いは式IIIにおけるtを少なくともR'''がHである場合又はIV成分が第二アミノ基を有する場合には少なくとも1とすることにより達成される。上記式の最も好適なアミンは式IIIによって示され、少なくとも2個の第一アミン基と少なくとも1個、好ましくは少なくとも3個の第二アミン基とを有する。

限定はしないが適するアミン化合物の例は次のものを包含する：1, 2-ジアミノエタン；1, 3-ジアミノプロパン；

1, 4-ジアミノブタン；1, 6-ジアミノヘキサン；ポリエチレンアミン、たとえばジエチレントリアミン；トリエチレンテトラミン；テトラエチレンペントミン；ポリプロピレンアミン、たとえば1, 2-プロビレンジアミン；ジ-(1, 2-プロビレン)トリアミン；N, N-ジメチル-1, 3-ジアミノブロバン；N, N-ジ-(2-アミノエチル)エチレンジアミン；N, N-ジ-(ヒドロキシエチル)-1, 3-プロビレンジアミン；3-ドデシルオキシプロピルアミン；N-ドデシル-1, 3-プロパンジアミン；トリスヒドロキシメチルアミノメタン(THAM)；ジイソプロパノールアミン；ジエタノールアミン；トリエタノールアミン；モノー、ジー及びトリエタノールアミン；アミノモルホリン、たとえばN-(3-アミノブロビル)モルホリン；並びにその混合物。

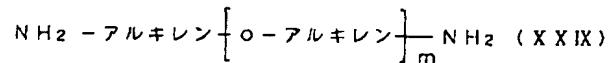
他の有用なアミン化合物は次のものを包含する：たとえば1, 4-ジ-(アミノメチル)シクロヘキサンのような脂環式ジアミン及びたとえばイミダゾリンのような複素環式窒素化合物、並びに一般式(V)：



[式中、p<sub>1</sub>及びp<sub>2</sub>は同一若しくは異なるものであってそれぞれ1~4の数値を有し、n<sub>1</sub>、n<sub>2</sub>及びn<sub>3</sub>は同一

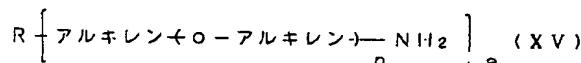
若しくは異なるものであってそれ1~3の整数である]のN-アミノアルキルペラジン。限定はしないがこの種のアミンの例は2-ベンタデシルイミダゾリン；N-(2-アミノエチル)ペラジンなどを包含する。アミン化合物の市販混合物も有利に使用することができる。たとえば、アルキレンアミンを製造するための1つの方法は、アルキレンジハライド（たとえば二塩化エチレン若しくは二塩化プロピレン）をアンモニアと反応させて窒素対がアルキレン基により結合されたアルキレンアミンの複合混合物をもたらし、たとえばジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペントミン及び異性体ペラジンのような化合物を生成させる。平均して約5~7個の窒素原子を1分子当たりに有する低コストのポリ(エチレンアミン)化合物が、たとえば「ポリアミンH」、「ポリアミン400」、「ダウポリアミンE-100」などの商品名で市販されている。

さらに、有用なアミンはたとえば式：



[式中、mは約3~70、好ましくは10~35の数値を有する]

及び式



特表平3-502114(38)

[式中、「n」は約1~40の数値を有し、ただし全nの合計は約3~約70、好ましくは約6~約35であり、R基における置換基の個数は3~6の数である「a」の数値により示される]

のようなポリオキシアルキレンポリアミンを包含する。式XXIX若しくはXVにおけるアルキレン基は約2~7個、好ましくは約2~4個の炭素原子を有する直鎖若しくは分枝鎖とすることができる。

上記式XXIX若しくはXVのポリオキシアルキレンポリアミン、好ましくはポリオキシアルキレンジアミン及びポリオキシアルキレントリアミンは約200~約4000、好ましくは約400~約2000の範囲の平均分子量を有することができる。好適ポリオキシアルキレンポリアミンはポリオキシエチレン及びポリオキシプロピレンジアミン、並びにポリオキシプロピレントリアミンを包含し、約200~2000の範囲の平均分子量を有する。ポリオキシアルキレンポリアミンは市販されており、たとえばシェファーソン・ケミカル・カンパニー社から「ジェファミンD-230、D-400、D-1000、D-2000、T-403」などの商品名で入手することができる。

アミンは容易にヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質、たとえばアルケニル無水コハク酸と反応し、その際5~95重量%の前記ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質を含有する油溶液を約100~250°C、好ましくは125~175°Cの温度まで一般に1~10時間、たとえば2~6時間にわたり所望量の水

基が2~約8個の炭素原子を有するような他のアルキレングリコールである。他の有用な多価アルコールはグリセリン、グリセリンモノオレイン酸エステル、グリセリンモノステアリン酸エステル、グリセリンモノメチルエーテル、ベンタエリスリトール、ジベンタエリスリトール及びその混合物を包含する。

さらにエステル分散剤は、たとえばアリルアルコール、シンナミルアルコール、プロバルギルアルコール、1-シクロヘキサン-3-オール及びオレイルアルコールのような不飽和アルコールから誘導することができる。本発明のエステルを生成しうる他の種類のアルコールはエーテルアルコール及びアミノアルコールを包含し、たとえばオキシアルキレン、オキシアリーレン、アミノアルキレン及びアミノアリーレン置換アルコールを包含し、1個若しくはそれ以上のオキシアルキレン、オキシアリーレン、アミノアルキレン若しくはアミノアリーレン基を有する。これらはセロソルブ、カルビトール、N,N,N',N'-テトラヒドロキシトリメチレンジアミン、並びにアルキレン基が1~約8個の炭素原子を有する約150個までのオキシアルキレン基を持ったエーテルアルコールを例とする。

エステル分散剤はコハク酸のジエステル若しくは酸性エステル、すなわち部分エステル化されたコハク酸；部分エステル化された多価アルコール若しくはフェノール、すなわち遊離アルコール若しくはフェノールヒドロキシル基を有するエステルとすることができる。上記エステルの混合物も本発明

が除去されるまで加熱する。加熱は、好ましくはアミドと塩とではなくイミド又はイミドとアミドとの混合物の生成を促進するよう行なわれる。ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質とアミン並びにここに記載した他の求核性反応体の当量との反応比は、反応体及び形成される結合の種類に応じて著しく変化することができる。一般に0.1~1.0、好ましくは約0.2~0.6、たとえば0.4~0.6当量のジカルボン酸単位含有量（たとえば置換無水コハク酸含有量）を求核性反応体、たとえばアミンの反応当量当たりに使用する。たとえば約0.8モルのベンタミン（2個の第一アミン基と5反応当量の窒素とを1分子当たりに有する）を好ましくは用いてアミドとイミドとの混合物まで交換し、すなわちこれはポリオレフィンと無水マレイン酸との反応から生ずる1,6の官能価を有する組成物となる。すなわち、好ましくはベンタミンを約0.4当量〔すなわち $1.6 \div (0.8 \times 5)$ 当量〕の無水コハク酸単位をアミンの1窒素反応当量当たりに与えるのに充分な量で使用する。

無灰分散剤エステルは、上記長鎖ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質とヒドロキシ化合物、たとえば一価及び多価アルコール若しくは芳香族化合物、たとえばフェノール及びナフトールなどの反応から誘導される。多価アルコールが最も好適なヒドロキシ化合物であり、好ましくは2~約10個のヒドロキシ基を有し、たとえばエチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール、ジプロピレングリコール、並びにアルキレン

の範囲内であると考えられる。

エステル分散剤は、たとえば米国特許第3,381,022号及び第3,836,471号各公報に示されたような幾つかの公知方法の1種で製造することができる。

上記長鎖ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質と反応させて分散剤を形成しうるヒドロキシアミンは2-アミノ-1-ブタノール、2-アミノ-2-メチル-1-ブロバノール、 $\beta$ -（ $\beta$ -ヒドロキシエチル）-アニリン、2-アミノ-1-ブロバノール、3-アミノ-1-ブロバノール、2-アミノ-2-メチル-1,3-ブロバンジオール、2-アミノ-2-エチル-1,3-ブロバンジオール、N-（ $\beta$ -ヒドロキシアロビル）-N'-( $\beta$ -アミノエチル)-ビペラジン、トリス（ヒドロキシメチル）アミノメタン（トリスメチロールアミノメタンとしても知られる）、2-アミノ-1-ブタノール、エタノールアミン、 $\beta$ -（ $\beta$ -ヒドロキシエトキシ）-エチルアミンなどを包含する。これら若しくは同様なアミンの混合物も用いることができる。ヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質との反応に適する求核性反応体の上記説明はアミン、アルコール及び混合アミン及びヒドロキシ含有反応性官能基の化合物、すなわちアミノ-アルコールをも包含する。

無灰分散剤の好適群は、無水コハク酸基で置換されかつ前記ポリエチレンアミン、たとえばテトラエチレンベンタミン、ベンタエチレンヘキサミン、ポリオキシエチレン及びポリオキシプロピレンアミン、たとえばポリオキシプロピレン

特表平3-502114(39)

米国特許公報に記載された物質がその例である：

- 米国特許第 3,725,217号
- 米国特許第 3,725,480号
- 米国特許第 3,726,882号
- 米国特許第 3,980,569号

4. カルボキシル、アミン若しくはマンニッヒ分散剤をたとえば尿素、チオ尿素、二硫化炭素、ホスホスルフル化炭化水素、アルデヒド、ケトン、カルボン酸、炭化水素置換無水コハク酸、ニトリル、エポキシド、酰素化合物、燐化合物などで後処理して得られる生成物。この種の物質の例は次の米国特許に記載されている：

- 米国特許第 2,805,217号
- 米国特許第 3,087,936号
- 米国特許第 3,254,025号
- 米国特許第 3,394,179号
- 米国特許第 3,511,780号
- 米国特許第 3,703,536号
- 米国特許第 3,704,308号
- 米国特許第 3,708,422号
- 米国特許第 3,850,822号
- 米国特許第 4,113,639号
- 米国特許第 4,116,876号

より詳細には、窒素及びエステル含有の分散剤は、好ましくはさらに亜硝化によって処理され、これは一般に米国特許第 3,087,936号及び第 3,254,025号（参考のためここに引用

ジアミン、トリスメチロールアミノメタン又は上記アルコール、たとえばベンタエリスリトール及びその組合せと反応させたポリイソブチレンから誘導されるものである。特に好適な分散剤の1種は、無水コハク酸基で置換されかつ（i）ヒドロキシ化合物、たとえばベンタエリスリトール、（ii）ポリオキシアルキレンポリアミン、たとえばポリオキシプロピレンジアミン、及び（又は）（iii）ポレアルキレンポリアミン、たとえばポリエチレンジアミン若しくはテトラエチレンベンタミン（P I B S A - T E P Aと称する）と反応させたポリイソブチレンから誘導されるものを包含する。他の好適種類の分散剤は、（i）ポリオキシアルキレンポノアミン、たとえばテトラエチレンベンタミン、及び（又は）（ii）多価アルコール若しくはポリヒドロキシ置換脂肪族第一アミン、たとえばベンタエリスリトール若しくはトリスメチロールアミノメタンと反応させたポリイソブチニル無水コハク酸から誘導されるものを包含する。

2. 比較的高分子量の脂肪族若しくは脂環式ハライドとアミン、好ましくはポリアルキレンポリアミンとの反応生成物。これらは「アミン分散剤」として特性化され、その例はたとえば米国特許第 3,275,554号、第 3,454,555号及び第 3,565,804号公報に記載されている。

3. アルキル基が少なくとも約30個の炭素原子を有するアルキルフェノールとアルデヒド（特にホルムアルデヒド）及びアミン（特にポリアルキレンポリアミン）との反応生成物。これは「マンニッヒ分散剤」として特性化される。次の

する）に教示されている。これは、選択された窒素分散剤を酸化窒素、ハロゲン化窒素、硼酸及び硼酸のエストラルよりも群から選択された硼素化合物で前記窒素分散剤の各1モルにつき約 0.1 原子比の硼素～全窒素分子の窒素の各原子比につき約 20 原子比の硼素を与えるような量で処理して容易に達成される。一般に、硼素化分散剤は前記硼素化窒素分散剤の全重量に対し約 0.05 ~ 2.0 重量%、たとえば 0.05 ~ 0.7 重量%の硼素を含有する。脱水された硼酸重合体〔主として  $(HBO_2)_3$ 〕として生成物中に存在すると思われる硼素は、アミン塩（たとえば前記ジイミドのメタ硼酸塩）として分散剤イミド及びジイミドに結合すると思われる。

処理は、約 0.05 ~ 4 重量%、たとえば 1 ~ 3 重量%（前記窒素分散剤の重量に対し）の前記硼素化合物、好ましくは特に一般にスラリーとして添加される硼酸を前記窒素分散剤に添加するとと共に搅拌しながら約 135 ~ 190°C、たとえば 140 ~ 170°C にて 1 ~ 5 時間にわたり加熱し、次いで前記温度範囲で窒素ストリッピングすることにより容易に行なわれる。或いは、硼素処理は、硼酸をカルボン酸物質とアミンとの熱反応混合物に水を除去しながら添加して行なうことができる。

ホスホスルフル化された炭化水素による後処理は、ポリアミンとヒドロカルビル置換ジカルボン酸物質との上記反応生成物をホスホスルフル化された炭化水素と後反応させることにより、たとえば各反応体を混合すると共にこの混合物を約 100°F ~ 約 400°F、たとえば 100 ~ 250°F、より一般に

約 150 ~ 約 225°F の範囲の温度にて 1 ~ 6 時間、より一般に 2 ~ 5 時間にわたり加熱して得ることができる。反応は、活性ガスの流れを加熱期間中に混合物に吹込むことにより促進することができる。

ホスホスルフル化された炭化水素は、たとえば  $P_2S_3$ 、 $P_2S_5$ 、 $P_4S_7$ 、 $P_4S_{10}$ 、好ましくは  $P_2S_5$  のような燃の硫化物と、たとえば重質石油フラクション、ポリオレフィンのような適する炭化水素材料又はたとえば  $\alpha$ -ビネン若しくは  $\beta$ -ビネンのようなテルペンとの反応により製造することができる。

ホスホスルフル化された炭化水素は、炭化水素を約 5 ~ 30 重量%の燃の硫化物、好ましくは約 10 ~ 20 重量%の五硫化磷と無水条件下で約 150 ~ 600°F の温度にて約 0.5 ~ 約 15 時間にわたり反応させて製造することができる。ホスホスルフル化された炭化水素の製造は当業界で周知されており、たとえば米国特許第 2,875,188号、第 3,511,780号、第 2,316,078号、第 2,805,217号及び第 3,850,822号各公報に記載されており、その開示を参考のためここに引用する。ホスホスルフル化反応生成物の製造は、たとえばライヤー及びワットにより 1988 年 6 月 24 日付けで出願された米国特許第出願第 211,428 号に記載されている。この出願は本出願人に係るものであって、その開示を参考のためここに引用する。

5. たとえばメタクリル酸デシル、ビニルデシルエーテル及び高分子量オレフィンのような油溶性モノマーと極性置換基を有するモノマー、たとえばアクリル酸アミノアルキル

若しくはアクリルアミド及びポリマー（オキシエチレン）置換アクリレートとの共重合体。これらは「高分子分散剤」とし特徴化することができ、その例は次の米国特許に開示されている：

米国特許第 3,329,658号

米国特許第 3,519,565号

米国特許第 3,666,730号

米国特許第 3,702,300号

上記米国特許を全て、無灰分散剤の開示に関しここに参考のため引用する。

潤滑油流动向上剤（L.O.F.I.）は、潤滑油中のワックス結晶の寸法、個数及び成長を流动点及びミニ回転粘度測定法（M.R.V.）のような試験により測定される改良された低温取扱性、ポンピング特性及び（又は）車両運転性を付与するよう改質する全ゆる添加剤を包含する。潤滑油流动向上剤の大部分は重合体であるか、或いは重合体を含有する。これら重合体は一般に2種類、すなわち骨格型又は側鎖型のいずれかである。

たとえばエチレン-酢酸ビニル（EVA）のような骨格型種類は重合体の骨格にランダム分布したエチレンセグメントの種々異なる長さを有し、これらはワックス結晶と結合し又は同時に重合体における分枝鎖及び非結晶性セグメントによりその後の結晶成長を阻止する。

L.O.D.I.として使用される主たる種類である側鎖型重合体はメチレンセグメントを側鎖として、好ましくは線状側鎖と

### 特表平3-502114 (40)

して有する。これら重合体は骨格型と同様に作用するが、ただし側鎖は潤滑油中に存在するイソバラフィン及びノーバラフィンを処理する際に一層効果的であると判明した。この種の重合体の代表例はC<sub>8</sub>～C<sub>18</sub>ジアルキルフマレート／酢酸ビニル共重合体、ポリアクリレート、ポリメタクリレート及びエステル化スチレン-無水マレイン酸共重合体である。

発泡抑制剤はポリシロキサン型、たとえばシリコーン油及びポリジメチルシロキサンなどの消泡剤により与えることができる。

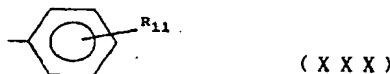
摩耗防止剤は、その名前が意味するように、可動金属部品の摩耗を減少させる。使用しうる慣用の摩耗防止剤の代表例は、たとえばジアルキルジチオ磷酸亜鉛、及びジアリールジチオ磷酸亜鉛を包含する。さらに、適する摩耗防止剤はライヤー及びグチエレスに係る本出願人による1988年6月24日付け出願の米国特許出願第210,831号及びその部分継続出願、すなわち1989年6月22日付け出願の米国特許出願第370,315号に記載された燐-及び硫黄-含有の生成混合物からなっている。これら出願は本出願人に係るものであって、その開示を参考のためここに引用する。

同一出願人によるこれら出願に開示された燐-及び硫黄-含有生成混合物の好適具体例においては、次の3種の成分、すなわち(i)有機ホスファイトエステル、(ii)ヒドロカルビルチオアルカノール、及び(iii)ヘテロジアルカノールを混合物として、好ましくは同時混合物として反応させる。

有機ホスファイトエステル反応体は、式：



[式中、R<sub>10</sub>は独立して同一若しくは異なるC<sub>1</sub>～C<sub>5</sub>、好ましくはC<sub>2</sub>～約C<sub>4</sub>の飽和若しくは不饱和直鎖若しくは分枝鎖（好ましくは直鎖）ヒドロカルビル基を示す] の少なくとも1種、又は式：



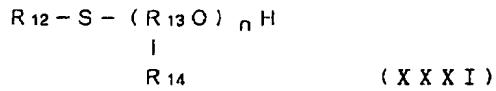
[式中、R<sub>11</sub>はH又はC<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキルを示す] の芳香族基を特徴とする。

適するR<sub>10</sub>基の代表例はメチル、エチル、n-ブロビル、i-ブロビル、n-アーチル、i-アーチル、t-アーチル、n-アテニル、n-ブロベニル、フェニル、p-メチルフェニル、p-ブロビルフェニル、o-アーチルフェニル及びp-アーチルフェニルを包含する。

より好適なR<sub>10</sub>基はエチル、n-ブロビル、n-アーチル及びフェニルを包含する。必要ではないが、R<sub>10</sub>基は任意所定の有機ホスファイトエステルにつき同一であることが好適である。最も好適なホスファイトエステルはジブチルホスファイト又はトリブチルホスファイトである。有機ホスファイト

エステル反応体の製造方法は当業界で知られており、たとえば米国特許第3,513,093号公報に記載され、その開示を参考のため引用する。

ヒドロカルビルチオカルカルカル反応体は次式：



[式中、R<sub>12</sub>及びR<sub>15</sub>は多くとも2個の不饱和結合（好ましくは直鎖アルキル）、典型的には約C<sub>6</sub>～C<sub>30</sub>、好ましくは約C<sub>8</sub>～C<sub>20</sub>、特に好ましくは約C<sub>10</sub>～C<sub>14</sub>アルキルを有する飽和若しくは不饱和の直鎖若しくは分枝鎖ヒドロカルビル基を示し；R<sub>13</sub>はC<sub>2</sub>～C<sub>3</sub>アルカントリイル基、好ましくはC<sub>2</sub>アルカントリイル基を示し；R<sub>14</sub>はH（最も好適）又は飽和若しくは不饱和の直鎖若しくは分枝鎖ヒドロカルビル基（好ましくは直鎖アルキル）、典型的には約C<sub>1</sub>～C<sub>18</sub>、好ましくはC<sub>1</sub>～C<sub>14</sub>、特に好ましくはC<sub>1</sub>～C<sub>12</sub>アルキルを示し；R<sub>16</sub>は飽和若しくは不饱和の直鎖若しくは分枝鎖ヒドロカルビル基（好ましくは直鎖アルキレン）、典型的にはC<sub>2</sub>～C<sub>30</sub>、好ましくはC<sub>2</sub>～C<sub>20</sub>、特に好ましくはC<sub>2</sub>～C<sub>18</sub>アルキレンを示し；nは1～約6、好ましくは1～約3の数値を示す] の少なくとも1つを特徴とする。典型的には、R<sub>13</sub>がC<sub>3</sub>アルカントリイルである場合にはnは1であり、さらにR<sub>13</sub>が

$C_2$  アルカントリイルである場合には  $n$  は 1 ~ 約 6 の範囲で変化することができる。

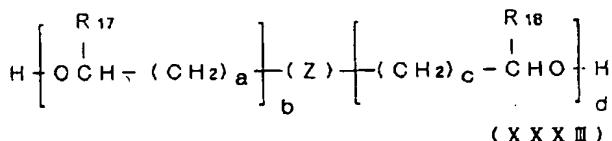
上記構造式 XXX I 及び式 XXX II の範囲内に入る適する化合物の代表例を第 1 表及び第 2 表にチャートとして示し、ここで特定化合物に関する種々の基のそれぞれをも示す。

第 1 表

式	$R_{12}-S-(R_{13}O)_nH$	(XXXI)	
	$R_{14}$		
$R_{12}$	$R_{13}$	$R_{14}$	$n$
$C_8H_{16}^-$	$-CH_2-CH-$	$CH_3^-$	1
$C_{10}H_{20}^-$	$-CH_2-CH-CH_2-$	$C_2H_5^-$	1
$C_{12}H_{24}^-$	$-CH_2-CH-$	$H^-$	1
$C_{14}H_{28}^-$	$-CH_2-CH-$	$C_2H_5^-$	2
$C_{15}H_{30}^-$	$-CH_2-CH-$	$C_3H_7^-$	3
$C_{20}H_{40}^-$	$-CH_2-CH-$	$C_6H_{13}^-$	3
$C_{25}H_{50}^-$	$-CH_2-CH-$	$C_{12}H_{25}^-$	1
$C_{30}H_{60}^-$	$-CH_2-CH-CH_2-$	$C_{18}H_{37}^-$	1

式	$R_{15}-S-R_{16}-OH$	(XXVII)
$R_{15}$	$R_{16}$	
$C_8H_{16}^-$	$-C_2H_4^-$	
$C_{10}H_{20}^-$	$-C_3H_6^-$	
$C_{12}H_{24}^-$	$-C_4H_8^-$	
$C_{14}H_{28}^-$	$-C_{10}H_{20}^-$	
$C_{15}H_{30}^-$	$-C_{10}H_{20}^-$	
$C_{20}H_{40}^-$	$-C_2H_4^-$	
$C_{25}H_{50}^-$	$-C_5H_{10}^-$	
$C_{30}H_{60}^-$	$-C_{10}H_{20}^-$	

ヘテロジアルカノール反応体は式：



[式中、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  はそれぞれ独立して水素及びアルキル、 $C_1$  ~ 約  $C_{12}$  アルキル（好ましくは直鎖アルキル）、好ましくは  $C_1$  ~ 約  $C_6$  アルキル、特に好ましくは  $C_1$  ~ 約  $C_3$  アルキルを示すことができ； $Z$  は  $-S-$ 、 $-S-S-$ 、 $-O-$  及び  $>NR'$  から選択される結合基であり、ここで  $R'$  は水素、 $C_1$  ~  $C_4$  アルキル、好ましくは  $C_1$  ~ 約  $C_3$  アルキル及びモノヒドロキシ置換アルキル、

好ましくは末端モノヒドロキシ置換アルキルであり、ここでアルキルは  $R_{17}$  及び  $R_{18}$  に同じ上記した意味を有し； $a$ 、 $b$ 、 $c$  及び  $d$  はそれぞれ独立して 1 ~ 約 3 の範囲で変化する好ましくは 1 若しくは 2 の数値を示す]

を特徴とする。好ましくは、 $R_{17}$  及び  $R_{18}$  は同一であり、 $b$  及び  $d$  により示される数値も同一であり、同じく  $a$  及び  $c$  により示される数値も同一であり、したがってビスアルカノールをもたらす。

$Z$  が  $-O-$  である場合、式 XXX II はエチレンギリコール及びその誘導体を示すことができ； $Z$  が  $>NR'$  でありかつ  $R'$  がアルキル若しくは水素である場合、式 XXX III はジエタノールアミン及びその誘導体を示すことができ、さらに  $R'$  がモノヒドロキシ置換アルキル、たとえば  $-(CH_2)_2-OH$  である場合、式 XXX III はトリエタノールアミン及びその誘導体を示すことができる。

$b$  若しくは  $d$  が 1 より大であれば、式 XXX III はたとえばエトキシリ化誘導体のようなヘテロジアルカノールのアルコキシリ化誘導体を現すことを意味する。

好適ヘテロジアルカノールは、式 XXX IIIにおいて  $Z$  が  $-S-$  でありかつ  $R_{17}$  及び  $R_{18}$  が独立して水素、エチル若しくはメチルであるチオジアルノールである。

式 XXX III の最も好適なチオジアルカノールにおいて  $a$ 、 $b$ 、 $c$  及び  $d$  はそれぞれ 1 若しくは 2 であり、 $X$  は 1 であり、 $R_{17}$  は水素若しくはメチルであり、 $R_{18}$  は水素、メチル若しくはエチルであり、かつ  $Z$  は塩基である。

代表的チオジアルカノールは 2, 2' -チオジエタノール；3, 3' -チオジプロパノール；チオビスエトキシエタノール；チオビスイソアロボキシイソプロパノール；及びその混合物を包含する。

適するチオアルカノール及びヘテロジアルカノールを選択する際、その少なくとも 1 種が少なくとも 1 個の  $-SCH_2-CH_2OH$  基を有するよう確保するのが望ましい。好適具體例において、有機ホスホフィトエステルとヒドロカルビルチオアルカノールとヘテロジアルカノールとの反応は、たとえばこれら 3 種の成分のそれぞれから選択される少なくとも 1 種を混合すると共に反応混合物を還流条件下で典型的には約 80 ~ 約 150°C (たとえば 80 ~ 約 125°C)、好ましくは約 90 ~ 約 125°C (たとえば 90 ~ 120°C)、特に好ましくは約 100 ~ 約 115°C の反応温度にて典型的には約 1 ~ 約 10 時間、好ましくは約 2 ~ 約 8 時間、特に好ましくは約 4 ~ 約 6 時間にわたり加熱することにより行なわれる。

反応の完結を決定する便利な方法は、試料を抜取りかつこれら試料を赤外分析にかけることにより反応混合物を定期的に監視することである。反応が進行するにつれて亜硝酸水素ピークが IR スペクトルの 4.1  $\mu$ m に出現し、その高さは反応の経過全体にわたり増大し続ける。同時に、アルコール副生ヘテロジアルカノール及びヒドロカルビルチオアルカノールに基づくヒドロキシリピーク (IR スペクトルにおける 2.9  $\mu$ m) の高さは低下する。したがって、反応中の所定時点において、亜硝酸水素ピークの高さはヒドロキシリピークの高さ

を越える。

反応はこの時点の後の任意の時点で終了し、好ましくはヒドロキシルピークが全く喪失する時点の前に終了する。反応をヒドロキシルピークが喪失する時点を越えて待続すれば相分離が生じる。

反応生成混合物からは典型的にはホスファイト反応体から誘導された低分子量アルコールをストリッピングすることができ、これはこの種のアルコールの引火点に関する安全性の理由からである。さらに、生成混合物における低分子量アルコールの存在は、典型的には最終的に経時的なアルコールの蒸発をもたらす。これは相分離を誘発し、或る場合ととえば全生成混合物を使用することを望む場合には望ましくない。この現象を回避し或いは2つの相を分離後に均質化するには、ストリッピングされたアルコールを高分子量アルコール（たとえばC<sub>8</sub>～C<sub>20</sub>アルコール）、たとえばトリデシルアルコールで交換するのが有利である。しかしながら、より高分子量のアルコールの添加は、好ましくは生成混合物を反応温度より低く冷却するまで行なってはならず、典型的には20～約40℃の温度で行なわれる。さもなくとも、より高分子量のアルコール添加は、望ましくない生成物転位を誘発する。

典型的には、より高分子量のアルコールは約80：20～約95：5、好ましくは90：10の生成物：アルコールの重量比を得るように添加される。

相分離が生ずる場合、下相は典型的にはヒドロカルビルホスファイト及び磷酸を含有し、上相は典型的には主として非

アミンのような塩基性触媒の存在下に加熱して行なうことができる。この種のスルフリル化反応は周知であり、たとえばコソラボフ「有機酸化合物」、第5巻、第53頁（1973）に検討されている。

シール膨潤剤は、たとえばトリデシルアルコールのような8～13個の炭素原子を有する脂肪族アルコールを包含する膨潤を惹起する極類の油を包含し、好適シール膨潤剤は10～60個の炭素原子と2～4個の結合とを有する油溶性の飽和脂肪族若しくは芳香族炭化水素エステルとして特性化され、たとえば米国特許第3,974,081号公報に記載されたようなフタル酸ジヘキシルである。

これら多数の添加剤の幾種かは複数の作用、たとえば分散剤／酸化阻止剤を与えることができる。この手段は周知されており、ここに詳細に説明する必要はない。

これら添加剤を含有する場合、組成物は典型的にはベース油中に通常の付随機能を与えるのに有効な量で配合される。この種の添加剤の代表的有効量を示せば次の通りである：

組成物	（広範囲）		（好適範囲）	
	重量%	重量%	重量%	重量%
V. I. 向上剤	1～12	1～4		
腐蝕阻止剤	0.01～3	0.010～1.5		
酸化阻止剤	0.01～5	0.01～1.5		
分散剤	0.1～10	0.1～5		
潤滑油運動向上剤	0.01～2	0.01～1.5		
洗剤及び銷止剤	0.01～6	0.01～3		

特表平3-502114 (42)

チオ及びオキシ含有エーテルを含有する。2相混合物をそのまま使用しうるが、これらの相をたとえば適する助溶剤、たとえば上記したようにトリデシルアルコールで均質化するのが好適である。

反応は触媒を用いて或いは用いずに行なうこともできるが、反応をたとえばナトリウムメトキシドのような塩基性触媒の存在下に行って反応時間を短縮するのが好適である。用いられる他の適する塩基性触媒は、たとえば石炭酸ナトリウム、第三アミン、たとえばトリエチルアミン若しくはビリジン、並びに金属炭酸塩、たとえば炭酸カリウム、炭酸ナトリウム若しくは炭酸マグネシウムを包含する。

好適具体例において、反応混合物における成分（I）（有機ホスファイトエステル）と（II）（ヒドロカルビルチオアルカノール）と（III）（ヘテロジアルカノール）とのモル比は、典型的には約1：0.6～1.4：0.8～1.4、好ましくは約1：0.8～1.2：0.9～1.2、特に好ましくは約1：0.9～1.1：0.9～1.1となるよう調節される。最も好適には、全部で3種の成分を当モル比で用いる。

大して好適でない具体例においては、各反応成分を順次に添加しあつ混合するが、ただしこの混合を上記反応温度に達する前に完了する。

上記混合反応生成物をそのまま使用することができる。しかしながら、生成物をスルフリル化して対応のチオホスフェートを生成させることができる。この種のスルフリル化は、生成物を掩蔽及びたとえば第三アミン、たとえばトリエチル

組成物	（広範囲）		（好適範囲）	
	重量%	重量%	重量%	重量%
消泡剤	0.001～0.1		0.001～0.01	
摩耗防止剤	0.001～5		0.001～1.5	
シール膨潤剤	0.1～8		0.1～4	
摩擦改質剤	0.01～3		0.01～1.5	
潤滑ベース油		残部		残部

したがって広義において、本発明の摩擦改質剤は潤滑油組成物中に典型的には少量で用いる場合、本発明の添加剤の不存在下における同じ組成物と対比して、少なくとも向上した摩擦改質性を付与するのに有効である。他の機用の添加剤、特に選択された種類の潤滑油組成物の特定要求を満たすべく選択された分散剤及び摩耗防止添加剤も所量に応じ含まれることができること。

したがって、成分-1を単独で用いる実施態様1につき、任意有効な摩擦改質量の成分-1アミドを潤滑油組成物中に混入しうるが、この種の有効量は典型的には組成物の重量に対し約0.001～約0.5重量%、好ましくは約0.01～約0.4重量%、特に好ましくは約0.05～約0.3重量%の量の添加剤を含む所定の組成物を与えるのに充分な量であると考えられる。

成分-1と成分-2との混合物を用いる実施態様2については、任意有効な摩擦改質量の前記混合物を潤滑油組成物中に用いられるが、この種の有効量は典型的には組成物の重量に

### 特表平3-502114(43)

特に添加して活性成分を約25～約100重量%、好ましくは約65～約95重量%、特に好ましくは約75～約90重量%の添加剤の合計量にて適する比率で含有する潤滑物を形成することができ、残部はベース油である。

最終組成物は典型的には約10重量%の添加剤パッケージを用いることができ、残部はベース油である。

上記したように、本発明で使用することが考えられる成分-1のアミド添加剤は、良好な摩擦改質特性を有すると特性化される。これは、その少量を用いて全体的に所望の摩擦改質を達成しうるという追加利点を有する。典型的には、ATF中に摩擦改質剤の量が増加するにつれ、分離トルクがより低くなる。分離トルク（並びに分離摩擦係数）が低下するにつれ、自動車トランスミッションのバンド及びクラッチが増えスリップを受け易くなる。その結果、液体の摩擦改質特性を犠牲にすることなく摩擦改質剤の量を調節し（たとえば減少させ）うることが極めて有利であり、これはたとえばトルク比 $T_O/T_D$ 又はトルク差 $T_O-T_D$ 及びその安定性によって測定される。何故なら、これは所望の分離トルクと他の摩擦特性との両者の同時達成を容易化させるからである。さらに、たとえば樹脂化若しくは非樹脂化カルボキシル分散剤又は樹脂化若しくは非樹脂化燐-及び硫黄-含有の反応生成混合分散添加剤のような無灰分添加剤の使用は、無灰分分散剤を含まない添加剤組合物と対比して優秀な摩擦耐久性及び低下した腐蝕性を有する潤滑油をもたらすことも判明した。

対し約0.01～約3重量%、好ましくは約0.02～約1.5重量%、特に好ましくは約0.03～約0.6重量%（たとえば0.2～約0.4重量%）の範囲で変化すると考えられる。上記の量は、成分-1と成分-2との組合物の重量%を意味する。混合物における各成分の重量比については上記した通りである。

実施態様3については、任意有効な摩擦改質量の塗膜添加物を潤滑油組成物中に混入しうるが、この種の有効量は典型的には組成物の重量に対し約0.01～約3重量%、好ましくは約0.02～約1.5重量%、特に好ましくは約0.03～約0.6重量%の添加剤の量を所定組成物に与えるのに充分な量である。

他の添加剤を用いる場合、必ずしも必要ではないが、本発明の添加剤組成物の潤滑液若しくは分散液を他の添加剤と一緒に含む添加剤潤滑物を作成するのが望ましく（この潤滑添加剤混合物をここでは添加剤パッケージと称する）、これにより数種の添加剤をベース油に同時に添加して潤滑油組成物を作成することができる。潤滑油中への添加剤潤滑物の溶解は溶剤によりかつ緩和な加熱を伴う混合より促進しうるが、これは必須でない。潤滑物若しくは添加剤パッケージは典型的には、本発明の摩擦改質添加剤と必要に応じ他の添加剤とを、添加剤パッケージが所定量のベース潤滑剤と組合せられる場合、最終組成物において所望濃度を与えるのに適切な量で含有するよう処方される。すなわち、添加剤を少量のベース油又は必要に応じ他の適する溶剤に他の所望の添加剤と一緒に

摩擦安定性における向上は、さらに成分-2と成分-1とを含ませることにより達成され、しかも液体の低温粘度特性及び馴らし時間に対する顕著な付随的影響を伴わない。

ここに示した重量%は全て、添加剤の活性成分（a. i.）含有量及び（又は）添加剤パッケージの全重量、すなわち各添加剤のa. i.重量と全油若しくは希釈剤の重量との合計である組成に基づいている。

したがって、本発明による摩擦改質添加剤の使用は、現在最も厳密なトランスミッション製造業者の仕様の下で要求される諸性質のバランスを達成すべく、ATFを配合業者が柔軟に処理することを可能にする。

以下、実施例により本発明を特定実施例として説明する。しかしながら、本発明はこれら実施例に示された特定の詳細のみに限定されないことを了解すべきである。これら実施例及び明細書中における部数及び%は、特記しない限り重量による。

#### 実施例 1

##### 部 A

1.04の無水コハク酸（SA）とポリイソブチレン（PIB）との比（SA:PIB）、すなわち官能価を有するポリイソブチニル無水コハク酸（PIBSA）を、940のMnを有する100部のポリイソブチレン（PIB）と13部の無水マレイン酸との混合物を約220°Cの温度まで加熱することにより作成した。温度が120°Cに達した際、塩素添加を開始し、かつ1.05部の塩素を一定速度にて熱混合物に約5時

間かけて添加した。次いで反応混合物を220°Cにて約1.5時間にわたり熱混漬し、次いで約1時間にわたり窒素でストリッピングした。得られたポリイソブチニル無水コハク酸は112のASTM鯨化値を有し、これは出発PIBに基づき1.04の無水コハク酸（SA）とポリイソブチレン（PIB）との比（官能価）まで次のように計算する：

$$\text{SA:PIB比} = \frac{\text{SAP} \times \text{Mn}}{112200 - (96 \times \text{SAP})} = \frac{112 \times 940}{112200 - (96 \times 1.04)} = 1.04$$

PIBSA生成物は90重量%の活性成分（a. i.）であり、残部は主として未反応のPIBであった。1.04のSA:PIBの比は、出発物質として反応器に添加された全PIB、すなわち反応するPIBと未反応のまま残るPIBとの両者の合計に基づいている。

##### 部 B

部AのPIBSAを次のようにアミノ化した：

1500g（1.5モル）のPIBSAと1666gのS 150N潤滑油（100°Cにて約150SSUの粘度を有する溶剤中性油）とを反応フラスコ内で混合し、約149°Cまで加熱した。次いで193g（1モル）の市販級のポリエチレンアミン（これは平均して1分子当たり約5～7個の窒素を有するポリエチレンアミンの混合物であり、以下PAMと称する）を添加し、この混合物を150°Cまで約2時間にわたり加熱し、次いで0.5時間にわたり窒素ストリッピングし、次いで冷却して最終生成物（PIBSA-PAM）を得た。この生成物は100°Cにて140csの粘度と2.12重量%の窒素含有量とを有し、さらに

約50重量%のPIBSA-PAMと50重量%の未反応PIB及び鉛油(S 150N)とを含有した。

#### 部 C

ホスホスルフリル化オレフィンを、4.9重量部のα-ビニンを1重量部の五硫化燐と約5時間にわたり180~250°Cの範囲の温度で反応させて作成した。反応の間、混合物を搅拌すると共に窒素を吹込んで、発生した硫化水素を除去した。得られたホスホスルフリル化オレフィンは約5重量%の燐及び約13重量%の硫黄の分析値を有した。210°Fにおけるその粘度は約27cstであった。その後の反応における取扱いを便利にするため、生成物をS 150N鉛油で希釈して65重量%濃厚物を形成させた。

#### 部 D

ホスホスルフリル化PIBSA-PAM分散剤を、部Bで作成された18重量部のPIBSA-PAM反応生成物を部Cで作成された6重量部のホスホスルフリル化α-ビニンと100~130°Cの範囲の温度にて約2時間反応させ、次いで反応物を窒素により約120°Cにてさらに1時間にわたりバージすることにより作成した。得られた生成物は約52%の活性成分濃度を有し、残部は未反応のPIB及び希釈油であった。

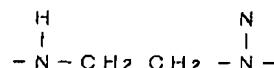
#### 実施例 2

イソステアリン酸(ISA)とテトラエチレンベンタミン(TEPA)、ユニオン・カーバイド社HP TEPAとの反応生成物を、450gのイソステアリン酸を迴流凝縮器と搅拌機と窒素吹込み装置とが装着された500mlの丸底4つ首フラ

特表平3-502114(44)

スコに添加して搅拌及び熱移動を可能にするのに充分な量を得るよう作成した。次いで、フラスコ内容物を110°Cまで加熱し、189g(約1モル)のTEPAを混合しながら徐々に添加した。TEPAの全部がフラスコに添加された後、さらに450gのISAを搅拌しながら110°Cにて添加した(全部で約3.125モルのISAを添加した)。次いで、バッチ温度を徐々に上昇させて縮合反応を促進させた。縮合水が直ちに出現し始め、これを窒素吹込みによりフラスコ頭上システムを介して除去した。この水の大部分が除去された後(約160°C)、減圧ストリッピングを行ない、かつフラスコ温度を200°Cまで上昇させて縮合を完結させた。約5時間後に反応が完結し、3モルのイソステアリン酸(ISA)が1モルのテトラエチレンベンタミン(TEPA)と反応してISA-TEPAを生成した。得られた生成物を摩擦改質剤-1(FM-1)と称する。

理論上、TEPAは式H<sub>2</sub>N-N-N-N-NH<sub>2</sub>(ここで-N-N-は:



を示す)を有する唯一のポリアミン化合物である。しかしながら、たとえばユニオン・カーバイド社のHP TEPAのような市販のTEPAは、実際にアミンの混合物からなっている。ユニオン・カーバイド社から市販入手しうるTEPAの実際の組成は次の通りである:

ポリアミン 構造	ユニオン・カーバイド	
	工業級 TEPA、重量%	ユニオン・カーバイド HP TEPA、重量%
N=N-N	13.6	2.0
N-N <sup>2</sup> -N-N	2.8	0.6
N <sup>2</sup> -N-N-N	9.4	3.5
N-N-N-N-N	12.6	13.5
N		
H-N-N-N-N-N	22.4	28.7
N-N <sup>2</sup> -N-N-N	14.5	19.7
N <sup>2</sup> -N-N-N-N	6.9	11.0
N-N-N-N-N-N	2.4	3.4
N		
N-N-N-N-N-N	3.8	3.4
N-N-N-N-N-N-N	2.4	2.6
未確認の高 分子量物質	9.2	10.8

#### 実施例 3

以下、試験ベースと称するATFベース液を通常量のシリル脱離添加剤、酸化防止剤、粘度指数向上剤及び鉛油ベースと配合した。

試験ベースの試料には、実施例1の部Dにしたがって作成

した3.9重量%のホスホスルフリル化PIBSA-PAM分散剤を実施例2のISA-TEPA摩擦改質剤の1.2重量%と一緒に添加した。

試験ベースの他の試料には、実施例1の部Dによる3.9%のホスホスルフリル化PIBSA-PAMを0.2%の市販の摩擦改質剤オクタデセニルコハク酸(OSA)と一緒に添加した。得られた粗成物を比較粗成物2Cと称する。

粗成物-1及び2Cの組成を第3表に要約すれば次の通りである:

第3表

成分、重量	粗成物 No.	
	1	2C
ホスホスルフリル化 PIBSA-PAM	3.9	3.9
ISA-TEPA	0.2	---
オクタデセニルコハク酸(OSA)	---	0.2
試験ベース	94.9	95.9

次いで、粗成物1及び2Cを改変SAE No.摩擦試験にしたがって試験した。

#### 改変SAE No.2摩擦試験

ここでは試験法1と称するこの試験は、異常なクラッシュ板摩耗若しくは粗成物-面板のフレーク化が生じることなく1000サイクルにわたり運転に成功するSAE No.2型摩擦機を用いる。この試験は100°Cにて20秒サイクルの逆続シリーズ

特表平3-502114 (45)

で行ない、各サイルは次のような3種の期間で構成される：すなわち期間I（10秒間）：3,600rpmの速度におけるモータ、クラッチ板脱着；期間II（5秒間）：モータ減勢、クラッチ板係合；及び期間III（5秒間）：モータ減勢、クラッチ板解除。11,600fl. / lbsを用いて1000サイクルを反復した（40psigの印加クラッチ圧力におけるフライホイールトルクの場合）。クラッチ係合の間、摩擦トルクをモータ速度が3600rpmから0まで低下する際に時間の関数として記録する。トルク追跡からクラッチ係合の開始時点と終了時点との間の中間（すなわち1800rpmのモータ速度）で測定した動的トルク（ $T_D$ ）、並びに200rpmにおけるトルク（ $T_{200}$ ）を決定した。モータ速度が3600rpmから0まで低下するのに要する期間IIにおける時間（秒数）を固定時間（look-up time）と称する。次いで油粗成物のトルク比を（ $T_{200} / T_D$ ）から決定し、同様にトルク差（ $T_{200} - T_D$ ）も測定した。さらに中間点の動的トルク（ $T_D$ ）及び200rpmにおけるトルク（ $T_{200}$ ）を測定する他、分離静トルクも測定した。これは主として試験法2に関し説明するように行なわれ、ただしクラッチ係合は液体の温度とは無関係に動的トルクサイクルの終了後に3秒間行なう。 $T_S$ を、試験法2に関し説明するように記録する。さらに、静トルク測定を行なった所定サイクル頻度は試験法2とは相違することができる。

分離静トルク比はトランスマッジョンがスリップに抵抗する能力を現し、この比が低いほどスリップが高くなる。

粗成物1及び2Cに関する試験結果を、第6表の試験1及

び2に示す。第6表に示したデータは、第1000サイクルから得られたものである。

試験法2における $T_{200} - T_D$ に関する産業上許容しうる範囲は約0.9～約1.0である。0.9より低い数値はクラッチをスリップさせると共に、1.0より増々高くなる数値は増々苛酷なシフトをもたらす。したがって、第6表から見られるように、比較粗成物2Cに関する $T_{200} / T_D$ の比は許容限界よりも高い。0.99において、粗成物1に関する $T_{200} / T_D$ の比は許容範囲内にある。8トルクとしても知られるバラメータ $T_{200} - T_D$ に関し、0～-10nmの範囲の数値は、産業上許容しうる円滑なシフト性能を与える。第6表に見られるように、比較粗成物2Cは+9.9の8トルクを特徴とし、これは極めて苛酷なシフト性能をもたらすのに対し、粗成物1は充分に許容範囲内にある8トルクを特徴とする。同様な考慮が分離静トルク比にも適用される。

かくして第6表のデータは、摩擦改質剤としてISA-TEPAを用いるATF粗成物が本発明のISA-TEPAの代りに市販の摩擦改質剤を用いた同様なATF粗成物よりも優秀であることを示している。

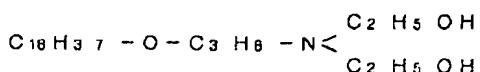
実施例4

実施例1の部日の手順にしたがってPIBSA-PAMを作成し、ただし2.2:1のPIBSA:PAMのモル比を用いた。98重量部のPIBSA-PAMを2重量部の硼酸と混合することにより、得られたPIBSA-PAMを固形化した。この混合物を攪拌しながら160°Cまで加热すると共に、

反応物に窒素を吹込んだ。この混合物を160°Cにて2時間保ち、窒素を1時間吹込み、かつ通過した。得られた生成物は0.35%の融解であると分析された。

試験ベースの他の試料に、実施例4による4.5重量%の硼酸化PIBSA-PAM分散剤と0.5重量%のトリフェニルホスファイト（TPP）と粗成物1に使用されたと同じISA-TEPA摩擦改質剤0.2重量%とを添加した。得られた粗成物を粗成物3と称する。

試験ベースの他の試料に、実施例4による4.5重量%の硼酸化PIBSA-PAM分散剤と0.5重量%のトリフェニルホスファイトと0.2重量%の式：



を有するヒドロキシエーテルアミン摩擦改質剤とを添加した。

ヒドロキシエーテルアミン摩擦改質剤は、先ず最初に270重量部のオクタデセニルアルコールと35重量部のアクリロニトリルとを酸若しくは堿基性触媒の存在下に20～600°Cの範囲の温度で6時間にわたり反応させてエーテルニトリル中間体を生成することにより作成した。次いで、この中間体をラネニケル触媒の存在下に25～40°Cの範囲の温度にて約2時間にわたり水素化して、エーテルアミンを生成させた。次いで、このエーテルアミンを44重量部の酸化エチレンと堿基触媒の存在下に20～約40°Cの範囲の温度にて2時間にわたり反応させて、ヒドロキシエーテルアミン生成物を得た。得

られた粗成物を比較粗成物4Cと称する。

粗成物2及び4Cの組成を下記第4表に要約する：

第4表

成分、重量%	粗成物No.	
	3	4C
硼酸化PIBSA-PAM	4.5	4.5
TPP	0.5	0.5
ISA-TEPA	0.2	---
ヒドロキシエーテルアミン	---	0.2
試験ベース	94.8	94.8

次いで、粗成物3及び4Cを次の4000サイクル摩耗試験にしたがって試験した。

4000サイクル摩耗試験

以下、試験法2と称するこの試験は、異常なクラッチ板摩耗若しくは粗成物一面板のフレーク化を生ずることなく4000サイクルにわたり運転して成功するSAE No.2型摩耗機を用いる。試験は20秒サイクルの連続シリーズで行ない、各サイクルは次のような3種の期間で構成される：すなわち期間I（10秒間）：3600rpmの速度におけるモータ、クラッチ板脱着；期間II（5秒間）：モータ減勢、クラッチ板係合；及び期間III（5秒間）：モータ減勢、クラッチ板解除。20,740Jのフライホイールエネルギーを用いて40psiの印加クラッチ圧力にて4000サイクルを反復する。クラッチ係合の間、摩擦トルクをモータ速度が3600rpmから0まで低下する際に時間

特表平3-502114 (46)

分離静トルク及び $T_S/T_D$ 比はトランスマッショングスリップに抵抗する能力を現し、この比が低いほどスリップが高くなる。

以下は4000サイクル摩擦試験条件の要約である：

サイクル速度：毎分 3 サイクル	
サイクル構成：モータ付勢、クラッチ解除	10 秒
モータ減勢、クラッチ係合	5 秒
モータ減勢、クラッチ解除	5 秒
温度：	115 +/ - 5 °C
圧力：	275 +/ - 3 kPa
速度：	3600 rpm
エネルギー：	20740 +/ 1000 J
液量：	305 mL +/ - 5 mL
ペーパー速度：毎秒 100 mm	
トルク検定：	2700 Nm
全サイクル数：	4000

粗成物 3 及び 4 C に関する試験結果を、第 6 表の試験 3 ~ 6 に示す。第 6 表に示したデータは、200サイクル及び4000サイクルの操作の後に測定した。

試験法 2 に関し、第 6 表に示した各種パラメータに関する代表的な許容範囲は次の通りである：

$$\begin{aligned} T_D &= 120 \sim 150 \\ T_S &= 90 \sim 130 \\ T_O/T_D &= 0.90 \sim 1.0 \end{aligned}$$

$$\Delta T_S = 200 \sim 4000 \text{ サイクルの間の } T_S \text{ 変化で} \\ \text{あって、摩擦耐久性を反映する。範囲} \\ \text{は40未満若しくは40に等しい。}$$

$$\text{固定} = 0.8 \sim 1.0$$

第 6 表から見られるように、粗成物 3 及び 4 C の両者は、200サイクル及び4000サイクルの両者の後に許容しうる $T_D$ 、 $T_S$  及び $T_O/T_D$  値を与える。しかしながら、200サイクルのデータと4000サイクルのデータとを比較することにより判るように、粗成物 3 は粗成物 4 C よりも高い摩擦安定性を特徴とする。この比較により判るように、ISA-TEPA を摩擦改質剤として用いた粗成物 3 につき、200サイクルから4000サイクルまで $T_O/T_D$  における測定しうる変化は存在しないのに対し、粗成物 4 C については $T_O/T_D$  において 0.06 単位 (6.2%) の僅かな変化があった。同様に、粗成物 3 につき $T_S/T_D$  には 0.01 単位 (1.3%) の僅かな変化が存在したのに対し、粗成物 4 C については $T_S/T_D$  において 15 単位 (17.4%) の変化が存在した。かくして、このデータは、摩擦改質添加剤として ISA-TEPA を用いた A-TF 粗成物が優秀な摩擦保持を有すると共に、示した全ゆる許容パラメータ範囲に合致することを示している。

実施例 5

炭-及び硫黄-含有の反応生成混合物を、還流凝縮器と搅拌棒と空気吹込装置とが接着された 500ml 丸底 4 つ首フラスコに 250g のトリプチルホスファイト (9 モル %) と 246g のヒドロキシエチル-ローデシルスルフィドと 122g のチオビス

エタノールと 0.05g のナトリウムメトキシドとを添加することにより作成した。反応フラスコを密封し、かつ窒素をフラッシュさせ、その内容物を 100°C まで加熱した。反応温度を 115°C に全部で 10 時間にわたり維持し、その間に約 180mL のブタノールを頭上から回収し、赤外分析は 4.1 μ の亜塩酸水素ピークがヒドロキシリピークを越えるような生成物転位を示し、このヒドロキシリピークはまだ完全には消失していないかった。得られた反応生成物は、5.8 重量 % の炭と 11.7 重量 % の硫黄とを含有しかつ単相混合物として存在することが判明し、これを摩耗防止添加剤 - 1 (すなわち AW-1) と称する。

試験ベースの試料に、実施例 4 による 4.5 重量 % の園素化 PIBSA-PAM 分散剤を実施例 5 の反応生成物を含有する 0.5 重量 % の AW-1 と実施例 2 の 0.165 重量 % の ISA-TEPA と共に添加した。得られた粗成物を粗成物 5 と称する。

試験ベースの他の試料に、4.5 重量 % の同じ園素化 PIBSA-PAM 分散剤と 0.5 重量 % の同じ炭-及び硫黄-含有の粗成物 5 に用いられた反応生成物とを添加した。得られた粗成物を比較粗成物 6 C と称する。

粗成物 5 及び 6 C の粗成を第 5 表に要約する。

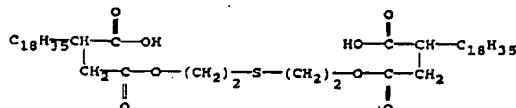
第5表

成分、重量%	組成物 No.	
	5	6C
硫素化PIBSA-PAM	4.5	4.5
燐-及び硫黄-含有の 反応生成物	0.5	0.5
ISA-TEPA	0.16	---
試験ベース	94.84	95.0

次いで組成物5及び6Cを、組成物1及び2Cを試験する際に使用したと同じ改質SAE No.2摩擦試験にしたがって試験した。試験の結果を第6表の試験7及び8として表に示す。

第6表のデータは、摩察改質剤としてISA-TEPAを用いたATF組成物(組成物5)がISA-TEPAを全く含有しない同様なATF組成物(組成物6C)よりもずっと円滑なシフト特性をもたらすことを示している。この結論は、約0.9~1.0の範囲より高い(すなわち1.07である)組成物6CのT<sub>200</sub>/T<sub>D</sub>の比及び0~-10n.m.の許容範囲よりも高い(すなわち+9.2)のトルクとに基づいている。組成物5に関するT<sub>200</sub>/T<sub>D</sub>の比及びトルクの両者は許容範囲内にある。

さらに第6表のデータは、組成物5におけるISA-TEPA摩擦改質剤の存在が摩擦改質添加剤を含有しない組成物6Cにおけるよりも分離トルクを低下させることを示している。



によって示すことができる。

上記コハク酸エステル成分-2摩擦改質添加剤を摩擦改質剤-3(FM-3)と称する。

#### 部-C

実施例1の部Bによる0.1重量部のFM-1(ISA-TEPA)に、実施例6の部Aによる0.25重量部のFM-2を至温にて添加した。得られた未反応混合物を「未反応摩擦改質剤混合物-1」(すなわちURFMM-1)と称する。

#### 部-D

実施例1による0.1重量部のFM-1(ISA-TEPA)に、実施例6の部Bによる0.25重量部のFM-3を至温にて添加した。得られた未反応混合物をURFMM-2と称する。

#### 部-E

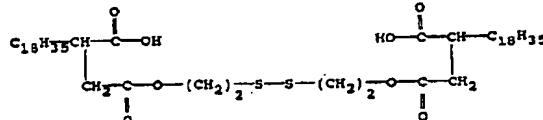
URFMM-1及び-2試料のそれぞれの1部を60℃まで加热し、かつこの温度に0.75時間にわたり搅拌しながら維持した。得られた各生成物は高粘性の液体であった。

URFMM-1から得られた塩生成物を摩擦改質塩-1(すなわちFMS-1)と称し、URFMM-2から得られた塩生成物をFMS-2と称する。

実施例6

#### 部-A

2-オクタデセニル無水コハク酸と2,2'-チオビスエタノールとのジエステル反応生成物を、0.5モルのアルコールを1モルの無水物に120℃で添加して作成した。反応混合物を、この温度にて無水カルボニル吸収バンドが反応混合物のIRスペクトルにて存在しなくなるまで搅拌した。この化合物は、式:



によって示すことができる。

このコハク酸エステル成分-2摩擦改質添加剤を摩擦改質剤-2(FM-2)と称する。

#### 部-B

2-オクタデセニル無水コハク酸と2,2'-ジチオビスエタノールとのジエステル反応生成物を、0.5モルのアルコールを1モルの無水物に120℃で添加して作成した。反応混合物を、この温度にて無水カルボニル吸収バンドが反応混合物のIRスペクトルにて存在しなくなるまで搅拌した。この化合物は、式:

実施例7

実施例4の部Bによる硫素化PIBSA-PAM分散剤と慣用の酸化阻止剤とシール膨潤剤と摩耗防止添加剤AW-1と選択された摩擦改質剤とを油中で搅拌しながら70℃にて1時間にわたり予備配合することにより、数種の充分処方された自動車トランスミッション液を作成した。次いで、予備配合物を慣用の粘度指数向上剤及びさらに希釈油と混合した。

充分処方された自動車トランスミッション液から摩擦改質剤を省略した組成物を試験9~24につき一定に保ち、第6表に要約したように存在させる摩擦改質剤のみを相違させた。

得られた組成物を、第6表に要約したように試験した。

第六章

脚註：

\*FM-1-ISA-TEPA

## FM-2-チオビスエタノールと反応させたOSA

FM-3 = ジチオビスエタノールと反応させたOSA  
URFMM-1 = 最終組成物において、それぞれ 0.1

### び 0.25 の A. I. 重量%における FM-1 と FM-2 との混合物

UR FMM-2-最終組成物において、それぞれ 0.1 及  
び 0.25 の A. I. 重量%における FM-1 と  
FM-3 との混合物

FMS-1 - 予備反応させてアミン塩を生成した  
UR FMM-1

FMS-2 = 予備反応させてアミン塩を生成した  
URFMM-2

＊＊AW-1=チオビスエタノールとヒドロキシエタノール  
-ドデシルスルフィドとトリアチルホスフ  
アイトとの反応生成物

TPP-トリフェニルホスファイト  
N/A-過塩化ナトリウム

以下只適用於，

6 表一(校き)

第6表の試験10から見られるように、FM-2の単独は23の $\Delta T_S$ を示したのに対し、FM-2をFM-1の量の2倍以上で用いたにも拘らずFM-1単独につき24を示す。しかしながら、これら2種を合すると、 $\Delta T_S$ は試験13～16につき15～19の間まで低下する。

さらに、FM-3の単独はURFMM-2よりも僅か良好な $\Delta T_S$ を示すのに対し、URFMM-2の他の摩擦特性はFM-2単独と比較して実質的に向上することにも注目される。他方、FMS-2はFM-2単独若しくはURFMM-2よりも良好な $\Delta T_S$ を与える。

以上、本発明の原理、好適実施例及び操作方式につき説明した。しかしながら、本発明は開示した特定例に限定することを意図せず、これらは単に例示の目的に過ぎず、本発明の思想及び範囲を逸脱することなく改変をなしうることが当業者には了解されよう。

## 特表平3-502114 (49)

国際調査報告																				
International Application No. PCT/US 89/04795																				
<p><b>I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> (According to International Patent Classification and IPC)</p> <p>IPC5: 141706, 141786, 141797, 141798, 141799, 141800, 141801, 141802, 141803, 141804, 141805, 141806, 141807, 141808, 141809, 141810, 141811;</p>																				
<p><b>H. FIELDS SEARCHED</b></p> <p>International Document Searcher's Name: _____ Classification System: _____ Classification Symbols: _____</p>																				
IPC5	C 10 M, C 08 G, C 07 C																			
<p>Documentation Searched other than Standard Documentation in the Fields that were Searched are Indicated in the Fields Searched:</p>																				
<p><b>B. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT*</b></p> <p>Category: "Cited as Document," with indication, where appropriate, of the relevant passage(s)     Reference to Class No.    </p> <table border="1"> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 3110673 (G.J. BENITO) 12 November 1963 see claims 1-6; column 3, line 68 - column 4, line 9</td> <td>1-8, 10- 20, 22-37, 39-47, 49- 51</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>cited in the application --</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 2291396 (E. LIBER) 28 July 1942 see claims 1-3</td> <td>1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>cited in the application --</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 3169980 (G.J. BENITO) 16 February 1965 see claims 1,2</td> <td>1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>cited in the application --</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> </table> <p>* Special references of other documents:     ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     *** Document which may contain details of an novelty element(s) or which is cited to establish the date of priority of an invention. ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.</p>			X	US, A, 3110673 (G.J. BENITO) 12 November 1963 see claims 1-6; column 3, line 68 - column 4, line 9	1-8, 10- 20, 22-37, 39-47, 49- 51	Y	cited in the application --	12-20, 22- 29	X	US, A, 2291396 (E. LIBER) 28 July 1942 see claims 1-3	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51	Y	cited in the application --	12-20, 22- 29	X	US, A, 3169980 (G.J. BENITO) 16 February 1965 see claims 1,2	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51	Y	cited in the application --	12-20, 22- 29
X	US, A, 3110673 (G.J. BENITO) 12 November 1963 see claims 1-6; column 3, line 68 - column 4, line 9	1-8, 10- 20, 22-37, 39-47, 49- 51																		
Y	cited in the application --	12-20, 22- 29																		
X	US, A, 2291396 (E. LIBER) 28 July 1942 see claims 1-3	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51																		
Y	cited in the application --	12-20, 22- 29																		
X	US, A, 3169980 (G.J. BENITO) 16 February 1965 see claims 1,2	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51																		
Y	cited in the application --	12-20, 22- 29																		
<p><b>IV. CERTIFICATION</b></p> <p>Date of the Actual Completion of the International Search: 23rd May 1990   Date of mailing of the International Search Report: 02.07.93</p> <p>International Searching Authority: EUROPEAN PATENT OFFICE   Signature of Authorized Officer: H. Daniels</p>																				

国際調査報告																				
International Application No. PCT/US 89/04795																				
<p><b>I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> (According to International Patent Classification and IPC)</p> <p>IPC5: 141706, 141786, 141797, 141798, 141799, 141800, 141801, 141802, 141803, 141804, 141805, 141806, 141807, 141808, 141809, 141810, 141811;</p>																				
<p><b>H. FIELDS SEARCHED</b></p> <p>International Document Searcher's Name: _____ Classification System: _____ Classification Symbols: _____</p>																				
IPC5																				
<p>Documentation Searched other than Standard Documentation in the Fields that were Searched are Indicated in the Fields Searched:</p>																				
<p><b>B. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT*</b></p> <p>Category: "Cited as Document," with indication, where appropriate, of the relevant passage(s)     Reference to Class No.    </p> <table border="1"> <tr> <td>X</td> <td>FR, A, 2250403 (LUBRIZOL) 12 June 1973 see claims 1,2; page 26, lines 1-19, page 28, line 12 - page 32, line 17</td> <td>1-8, 11- 15, 20-23- 32, 37, 40- 43, 47, 50, 51</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>--</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 3405064 (C.O. MILLER) 8 October 1968 see claims 1-7; column 4, line 22 - column 5, line 38</td> <td>1-6, 10-20, 22-29, 40-45, 47, 49-51, 182-185</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>--</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 4705643 (T.K. NENO) 10 November 1987 see claims 1-6</td> <td>1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>cited in the application</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> </table> <p>* Special references of other documents:     ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     *** Document which may contain details of an novelty element(s) or which is cited to establish the date of priority of an invention. ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.</p>			X	FR, A, 2250403 (LUBRIZOL) 12 June 1973 see claims 1,2; page 26, lines 1-19, page 28, line 12 - page 32, line 17	1-8, 11- 15, 20-23- 32, 37, 40- 43, 47, 50, 51	Y	--	12-20, 22- 29	X	US, A, 3405064 (C.O. MILLER) 8 October 1968 see claims 1-7; column 4, line 22 - column 5, line 38	1-6, 10-20, 22-29, 40-45, 47, 49-51, 182-185	Y	--	12-20, 22- 29	X	US, A, 4705643 (T.K. NENO) 10 November 1987 see claims 1-6	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51	Y	cited in the application	12-20, 22- 29
X	FR, A, 2250403 (LUBRIZOL) 12 June 1973 see claims 1,2; page 26, lines 1-19, page 28, line 12 - page 32, line 17	1-8, 11- 15, 20-23- 32, 37, 40- 43, 47, 50, 51																		
Y	--	12-20, 22- 29																		
X	US, A, 3405064 (C.O. MILLER) 8 October 1968 see claims 1-7; column 4, line 22 - column 5, line 38	1-6, 10-20, 22-29, 40-45, 47, 49-51, 182-185																		
Y	--	12-20, 22- 29																		
X	US, A, 4705643 (T.K. NENO) 10 November 1987 see claims 1-6	1-6, 10- 18, 22-29, 40-45, 49- 51																		
Y	cited in the application	12-20, 22- 29																		
<p><b>IV. CERTIFICATION</b></p> <p>Date of the Actual Completion of the International Search: _____   Date of mailing of the International Search Report: _____</p> <p>International Searching Authority: EUROPEAN PATENT OFFICE   Signature of Authorized Officer: _____</p>																				

国際調査報告																	
International Application No. PCT/US 89/04795																	
<p><b>I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> (According to International Patent Classification and IPC)</p> <p>IPC5: 129,95, 135,24, 149,16, 131,04)</p>																	
<p><b>H. FIELDS SEARCHED</b></p> <p>International Document Searcher's Name: _____ Classification System: _____ Classification Symbols: _____</p>																	
IPC5																	
<p>Documentation Searched other than Standard Documentation in the Fields that were Searched are Indicated in the Fields Searched:</p>																	
<p><b>B. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT*</b></p> <p>Category: "Cited as Document," with indication, where appropriate, of the relevant passage(s)     Reference to Class No.    </p> <table border="1"> <tr> <td>Y</td> <td>DE, A, 1545296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2</td> <td>12-20, 22- 29</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1-6; column 20, lines 1-9; column 21, line 43</td> <td>9</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 3630902 (K. COUPLAND) 28 December 1971 see claims 1,10; column 3, lines 10-36, 57-70</td> <td>9, 21, 23, 27, 38, 46</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>DE, A, 1345296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2</td> <td>21, 23, 27, 38, 46</td> </tr> <tr> <td>P, X</td> <td>EP, A, 319229 (EXXON) 7 June 1989 see claims 1,6-13,16,17,20,22-24,27</td> <td>9</td> </tr> </table> <p>* Special references of other documents:     ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     *** Document which may contain details of an novelty element(s) or which is cited to establish the date of priority of an invention. ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.</p>			Y	DE, A, 1545296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2	12-20, 22- 29	X	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1-6; column 20, lines 1-9; column 21, line 43	9	A	US, A, 3630902 (K. COUPLAND) 28 December 1971 see claims 1,10; column 3, lines 10-36, 57-70	9, 21, 23, 27, 38, 46	A	DE, A, 1345296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2	21, 23, 27, 38, 46	P, X	EP, A, 319229 (EXXON) 7 June 1989 see claims 1,6-13,16,17,20,22-24,27	9
Y	DE, A, 1545296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2	12-20, 22- 29															
X	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1-6; column 20, lines 1-9; column 21, line 43	9															
A	US, A, 3630902 (K. COUPLAND) 28 December 1971 see claims 1,10; column 3, lines 10-36, 57-70	9, 21, 23, 27, 38, 46															
A	DE, A, 1345296 (ESOC) 18 December 1969 see page 11, paragraph 2	21, 23, 27, 38, 46															
P, X	EP, A, 319229 (EXXON) 7 June 1989 see claims 1,6-13,16,17,20,22-24,27	9															
<p><b>IV. CERTIFICATION</b></p> <p>Date of the Actual Completion of the International Search: _____   Date of mailing of the International Search Report: _____</p> <p>International Searching Authority: EUROPEAN PATENT OFFICE   Signature of Authorized Officer: _____</p>																	

国際調査報告																													
International Application No. PCT/US 89/04795																													
<p><b>I. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> (According to International Patent Classification and IPC)</p> <p>IPC5: 129,95, 135,24, 149,16, 131,04)</p>																													
<p><b>H. FIELDS SEARCHED</b></p> <p>International Document Searcher's Name: _____ Classification System: _____ Classification Symbols: _____</p>																													
IPC5																													
<p>Documentation Searched other than Standard Documentation in the Fields that were Searched are Indicated in the Fields Searched:</p>																													
<p><b>B. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT*</b></p> <p>Category: "Cited as Document," with indication, where appropriate, of the relevant passage(s)     Reference to Class No.    </p> <table border="1"> <tr> <td>A</td> <td>GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5</td> <td>52-58, 61, 72-78, 81, 186,198</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12</td> <td>59,79</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application</td> <td>52,62-67, 72,82-87, 92,97,102, 107,112, 186,190</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16,17-70</td> <td>60</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application</td> <td>60,62-68, 82-87,92, 97,102, 107,111</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5</td> <td>117-123, 126,127- 143,146</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12</td> <td>124</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 43 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application</td> <td>117,127- 132,137, 137-152, 157-161, 167,172, 177,191, 194-197</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16, 17-70</td> <td>125</td> </tr> </table> <p>* Special references of other documents:     ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     *** Document which may contain details of an novelty element(s) or which is cited to establish the date of priority of an invention. ** Document concerning the general state of the art which is not cited as document but is referred to in another document as being relevant to the invention.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.     ** Document published prior to the international filing date but not cited as document because it was already contained in a document cited as document.</p>			A	GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5	52-58, 61, 72-78, 81, 186,198	A	US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12	59,79	A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	52,62-67, 72,82-87, 92,97,102, 107,112, 186,190	A	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16,17-70	60	A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	60,62-68, 82-87,92, 97,102, 107,111	A	GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5	117-123, 126,127- 143,146	A	US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12	124	A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 43 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	117,127- 132,137, 137-152, 157-161, 167,172, 177,191, 194-197	A	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16, 17-70	125
A	GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5	52-58, 61, 72-78, 81, 186,198																											
A	US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12	59,79																											
A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	52,62-67, 72,82-87, 92,97,102, 107,112, 186,190																											
A	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16,17-70	60																											
A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 93 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	60,62-68, 82-87,92, 97,102, 107,111																											
A	GB, A, 1061494 (LUBRIZOL) 15 March 1967 see claims 1,2,10,11; page 2, line 16 - page 3, line 5	117-123, 126,127- 143,146																											
A	US, A, 4151173 (P.W. VOGEL) 24 April 1979 see claim 1, column 5, line 54 - column 6, line 6; column 1, lines 6-12	124																											
A	US, A, 4760170 (A. GUTTIERREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 43 - column 5, line 36; column 11, line 66 - column 14, line 19 cited in the application	117,127- 132,137, 137-152, 157-161, 167,172, 177,191, 194-197																											
A	US, A, 3445441 (B.M. RUSHTON) 20 May 1969 see claims 1,10; columns 10-16, 17-70	125																											
<p><b>IV. CERTIFICATION</b></p> <p>Date of the Actual Completion of the International Search: _____   Date of mailing of the International Search Report: _____</p> <p>International Searching Authority: _____   Signature of Authorized Officer: _____</p>																													

International Application No. PCT/US 89/04785

<b>PATENT INFORMATION (CONTINUED FROM THE SECOND SHEET)</b>		
A	US, A, 4760170 (A. GUTTIEREZ) 26 July 1988 see column 2, lines 13-63; column 3, line 95 - column 3, line 36; column 11, line 62 - column 14, line 19 cited in the application	125,127- 132,145, 147-153, 157,162, 167,172, 177
<b>VII. OBSERVATIONS WHERE CLAIMS WERE FOUND UNSEARCHABLE</b> <small>The International Search Report is not issued because not at least one of certain claims under Article 17(2) (a) for the following reasons:</small>		
<input type="checkbox"/> <small>Claim number ... would use other table if a subject matter not referred to in accordance by the Authority, namely:</small>		
<input type="checkbox"/> <small>Claim number ... because they relate to parts of the International classification that do not entirely cover the protection required or such as such that no meaningful international search can be carried out, namely:</small>		
<input type="checkbox"/> <small>Claim number ... because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the rules of the Patent Cooperation Treaty Rule 14(a).</small>		
<b>VIII. OBSERVATIONS WHERE UNITY OF INVENTION IS LACKING</b> <small>The International Searching Authority found multiple inventions in the International application as follows:</small>		
<small>Claims 1-8, 10-20, 22-37, 39-47, 49-51, 182-185</small>		
<small>Claims 5, 21, 23, 27, 38, 48</small>		
<small>Claims 52, 53, 55, 56, 81-116, 186-190, 198</small>		
<small>Claims 125, 127-136, 145</small>		
<small>Claims 147-161, 191-197</small>		
<small>Claims 117-124, 126-144, 146-161, 191-197</small>		
<input type="checkbox"/> <small>All of the request contains errors. New ones should add to the additional, the International Search Report should be discarded.</small>		
<input type="checkbox"/> <small>All or some parts of the request additional inventors have been made and by the applicants, the International Search Report covers only their country of the International application, for which two more new, specifically, should.</small>		
<input type="checkbox"/> <small>No reported additional search has been fully paid by the applicant. Consequently, the International Search Report is recorded in the European Patent Database in the document is covered by each number.</small>		
<input type="checkbox"/> <small>All of the request cannot be considered without paid (including an additional fee), the International Searching Authority did not receive payment of the additional fee.</small>		
<input type="checkbox"/> <small>As such as Patent</small>		
<input type="checkbox"/> <small>The PCT and search fees were compensated by applicant's agent.</small>		
<input type="checkbox"/> <small>No amount compensated the payment of additional search fees.</small>		

Form PCT/ISA/172 International Search (EU) January 1989

## 国際調査報告

US 8904795  
SA 32198

This sheet lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned International search report. The numbers are as contained in the European Patent Office EPO file on 11/04/90. The European Patent Office is in no case liable for those particulars which are merely given for the purpose of information.

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family members	Publication date
US-A- 3110873		None	
US-A- 2291396		None	
US-A- 3169980		FR-A- 1318311 GB-A- 951495	
FR-A- 2253043	27-06-75	None	
US-A- 3405064		None	
US-A- 4705643	10-11-87	None	
DE-A- 1545196	18-12-69	BE-A- 658236 DE-A- 1495620 FR-A- 1446313 GB-A- 1075121 NL-A- 6500317	13-07-65 27-03-69
US-A- 3445441	20-05-69	US-A- 3509047 US-A- 3514250	28-04-70 28-05-70
US-A- 3630902	28-12-71	None	
DE-A- 1545196	18-12-69	BE-A- 658236 DE-A- 1495620 FR-A- 1446313 GB-A- 1075121 NL-A- 6500317	13-07-65 27-03-69
EP-A- 0319229	07-06-89	US-A- 4857217 AU-A- 2631688	15-08-89 01-09-89
GB-A- 1061494		None	
US-A- 4151173	24-04-79	US-A- 3806456	23-04-74
US-A- 4760170	26-07-88	AU-B- 588336 AU-A- 5936686 DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	14-09-89 08-01-87 01-09-88 07-01-87 14-03-87
GB-A- 1061494		None	
US-A- 4151173	24-04-79	US-A- 3806456	23-04-74
US-A- 4760170	26-07-88	AU-B- 588336 AU-A- 5936686 DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	14-09-89 08-01-87 01-09-88 07-01-87 14-03-87
US-A- 3445441	20-05-69	US-A- 3509047 US-A- 3514250	28-04-70 28-05-70
US-A- 4760170	26-07-88	AU-B- 588336 AU-A- 5936686 DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	14-09-89 08-01-87 01-09-88 07-01-87 14-03-87

For more details about this sheet, see Official Journal of the European Patent Office, No. 11/92

## 国際調査報告

US 8904795  
SA 32198

This sheet lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned International search report. The numbers are as contained in the European Patent Office EPO file on 11/04/90. The European Patent Office is in no case liable for those particulars which are merely given for the purpose of information.

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family members	Publication date
US-A- 4760170		DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	01-09-88 07-01-87 14-03-87
US-A- 3445441	20-05-69	US-A- 3509047 US-A- 3514250	28-04-70 28-05-70
US-A- 4760170	26-07-88	AU-B- 588336 AU-A- 5936686 DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	14-09-89 08-01-87 01-09-88 07-01-87 14-03-87
US-A- 3445441	20-05-69	US-A- 3509047 US-A- 3514250	28-04-70 28-05-70
US-A- 4760170	26-07-88	AU-B- 588336 AU-A- 5936686 DE-A- 3660427 EP-A- B 0207738 JP-A- 62059244	14-09-89 08-01-87 01-09-88 07-01-87 14-03-87

For more details about this sheet, see Official Journal of the European Patent Office, No. 11/92

第1頁の続き

⑤Int. Cl.  
//(C 10 M 141/08  
133: 16  
133: 40  
135: 26)  
C 10 N 30: 04  
30: 06  
40: 04  
40: 08

識別記号 廃内整理番号

- |                             |   |
|-----------------------------|---|
| ⑥発明者 ライアーティー, ジャック          | アメリカ合衆国 08816 ニュージャージー, イースト ブランズ<br>ウイツク, ジエンセン ストリート 61 |
| ⑦発明者 ルンドバーグ, ロバート デイ<br>ーン  | アメリカ合衆国 08807 ニュージャージー, ブリッジウォータ,<br>ブライアン ドライブ 4         |
| ⑧発明者 ヨネト, ヤスヒコ              | 日本国神奈川県藤沢市ワタウチ309-4                                       |
| ⑨発明者 ブロック, リカードー アルフ<br>レドー | アメリカ合衆国 07076 ニュージャージー, スコット ブレイン<br>ズ, アシブルツク ドライブ 1532  |
| ⑩発明者 ワッツ, レイモンド フレデリ<br>ック  | アメリカ合衆国 07853 ニュージャージー, ロング バリー, オ<br>クスフォード レイン 7        |

【公報種別】特許法第17条第1項及び特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第3部門第3区分  
 【発行日】平成9年(1997)4月8日

【公表番号】特表平3-502114  
 【公表日】平成3年(1991)5月16日  
 【年通号数】  
 【出願番号】特願平1-511324  
 【国際特許分類第6版】

C10M 133/16  
 133/40  
 141/08  
 //C10M 141/08  
 133:16  
 133:40  
 135:26 )  
 C10N 30:04  
 30:06  
 40:04  
 40:08

(F I)  
 C10M 133/16 9547-4H  
 133/40  
 141/08

手続実用DE書  
 平成8年10月24日  
 特許庁長官 清井 寿光 殿  
 事件の表示 平成1年特許願第511324号  
 補正をする者  
 事件との関係 特許出願人  
 名称 エクソン ケミカル パテント  
 インコーポレイティッド

代理人  
 〒103  
 住所 東京都中央区日本橋3丁目13番1号  
 油脂工業会館3階(電話3273-5436番)  
 氏名 (6781) 弁理士 倉内 基弘  


補正の対象  
 请求の範囲

補正の内容 別紙の通り

## 請求の範囲

1. (a) 潤滑油と、  
 (b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質剤とからなり、前記イミダゾールフリーのアミド含有反応生成物は、約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

2. (a) 潤滑油と、  
 (b) 実質的にイミダゾールフリーの化合物の摩擦改質剤とからなり、前記イミダゾールフリーの化合物はC<sub>1</sub>～C<sub>10</sub>脂肪族モノ酸とポリアミンとを反応させて生成され、ここで約2～約10モル当量の前記脂肪族モノ酸を前記ポリア

ミンの1モル当りに反応させ、さらに前記ポリアミンは3～約15個の窒素原子と全部で約2～約60個の炭素原子とを有し、前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択され、前記ポリアミンは少なくとも1個の第一アミン基と少なくとも2個の追加第一若しくは第二アミン基とを有することを特徴とする動力伝達液。

3. 約75重量までの量のベース油と、潤滑油に対し約25～約100重量%の実質的にイミダゾールフリーの摩擦改質反応生成物とからなり、前記摩擦改質反応生成物は、約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と3～約15個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択される

ことを特徴とする添加剤濃厚液。

4. 動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質を改良するに際し、前記潤滑油と摩擦改質量の添加剤組成物

とを混合することからなり、前記添加剤組成物は、

(a) 潤滑油と、

(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質量と

からなり、前記イミダゾールフリーのアミド含有反応生成物は約120～約250℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミン反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする潤滑油の摩擦改質の改良方法。

5. 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との反応から誘導されるアミン塩組成物において：

#### A. 成分-1は

(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在

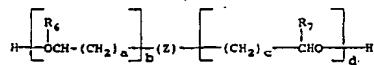
するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-1アミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-1-1酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b)得られる成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない、

#### B. 成分-2は

(1) 構造式：

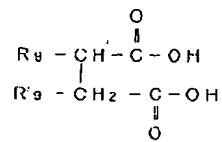


(XXIII)

[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR。から選択される結合基を示し、ここでR<sub>6</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]

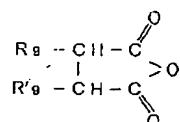
により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造式



(XXIV)

及び



(XXV)

[式中、R'は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>脂肪族ヒドロカルビルであり、R<sub>8</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)反応体B-1の少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体B-1-1の少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とするアミン塩組成物。

6. (1) 潤滑油と、

(2) 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との反応により生成される摩擦改質量のアミン塩組成物と

からなり。

(A) 成分-1は

(1) 全部で約2～約80個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-1アミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-i-1酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b)得られる成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2は

(i) 構造式：

[式中、R<sub>6</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される既若しくは酸無水物と

を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)反応体B-iの少なくとも1個のヒドロキシル基を反応体B-i-1の少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

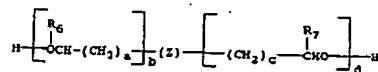
7. 約7.5重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約2.5～約1.00重量%の請求の範囲第6項に記載の塩組成物とからなる添加剤濃厚物。

8. 摩擦改質剤として請求の範囲第6項に記載の塩組成物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

9. 摩擦改質量の少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸とからなる混合物を含み、ここで

(A) 成分-1は

(i) 全部で約2～約80個の炭素原子と少なくとも3個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原

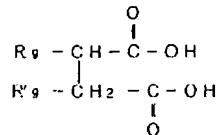


(XXIII)

[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR。から選択される結合基を示し、ここでR<sub>6</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる】

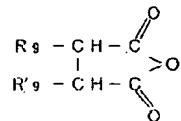
により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造式：



(XXIV)

及び



(XXV)

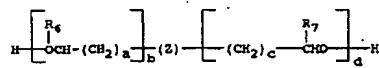
子の少なくとも2個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-i-1酸の酸基と反応させてアミドを生成させるのに充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2は

(i) 構造式：



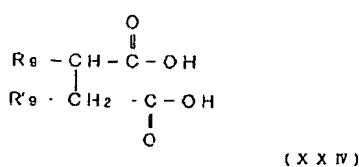
(XXIII)

[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し、Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR。から選択される結合基を示し、ここでR<sub>6</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる】

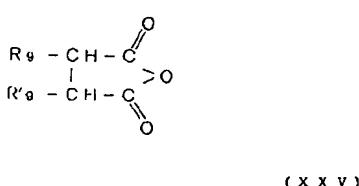
により示されるアルコールと、

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造

式:



及び



[式中、 $\text{R}'_6$  は水素、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  脂肪族ヒドロカルビルであり、 $\text{R}_6$  は約 1.2 ~ 約 5.0 個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

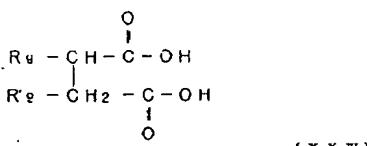
により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a) 反応体  $B-i$  の少なくとも 1 個のヒドロキシル基を反応体  $B-i-1$  の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させると共に、(b) 得られる成分-2 反応生成物に少なくとも 1 個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とする組成物。

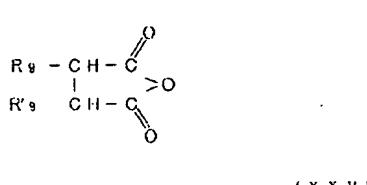
[式中、 $\text{R}_6$  及び  $\text{R}'_6$  はそれぞれ独立して水素又は  $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1 ~ 約 3 の範囲で変化しうる数値を示し： $Z$  は  $-S-$ 、 $-S-S-$ 、 $-O-$  及び  $>NR$ 。から選択される結合基を示し、ここで  $R$  は水素、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  アルキル若しくは  $\text{C}_1 \sim \text{C}_6$  モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]

により示されるアルコールと、

(1.1) アルコール 1 モル当り約 1 ~ 約 2 モルの各構造式：



及び



[式中、 $\text{R}_6$  は約 1.2 ~ 約 5.0 個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

1.0. (1) 潤滑油と、

(2) 少なくとも 1 種の成分-1 アミンと少なくとも 1 種の成分-2 酸とからなる摩擦改質量の混合物とからなり、

(A) 成分-1 は

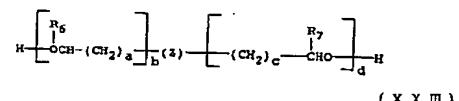
(1) 全部で約 2 ~ 約 6.0 個の炭素原子と少なくとも 3 個 ~ 約 1.5 個までの炭素原子とを有し前記炭素原子の少なくとも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の炭素原子の少なくとも 2 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(1.1) 約 1.0 ~ 約 3.0 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも 1 種の反応生成物であり、前記反応は反応体  $A-1$  アミンの少なくとも 1 回のアミン基を反応体  $A-i$  酸の酸基と反応させてアミドを生成させるのに充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2 は

(1) 構造式：



により示される酸若しくは酸無水物とを反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は反応体  $B-i$  の少なくとも 1 個のヒドロキシ基を反応体  $B-i-1$  の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエステルを生成させるのに充分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

1.1. 約 7.5 重量 %までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約 2.5 ~ 約 1.00 重量 %の請求の範囲第 1.0 項に記載の混合物とからなる添加剤濃厚物。

1.2. 摩擦改質剤として、請求の範囲第 1.0 項に記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

1.3. (a) 潤滑油と、

(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質量と

からなり、前記反応生成物は約 120 ~ 約 250 °C の温度にて (1) 全部で約 2 ~ 約 6.0 個の炭素原子と少なくとも 2 個 ~ 約 1.5 個までの炭素原子とを有し前記炭素原子の少なくとも 1 個が第一アミン基として存在すると共に残余の炭素原子の少なくとも 1 個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2) 約 1.0 ~ 約 3.0 個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸とを反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体

1モル当り約2～約10モル当量の脂肪酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した润滑油組成物。

14. (a) 润滑油と。

(b) 実質的にイミダゾールフリーの化合物の摩擦改質量とからなり、前記イミダゾールフリーの化合物はC<sub>11</sub>～C<sub>18</sub>脂肪族モノ酸をポリアミンと反応させて生成され、ここで約2～約10モル当量の前記脂肪族モノ酸を前記ポリアミン1モル当りに反応させると共に、前記ポリアミンは2～約15個の窒素原子と全部で2～約60個の炭素原子とを有し、前記脂肪酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択され、さらに前記ポリアミンは少なくとも1個の第一アミン基と少なくとも1個の追加第一若しくは第二アミン基とを有することを特徴とする動力伝達液。

15. 約7.5重量%までの量のベース油と、油厚物に対し約2.5～約1.00重量%の実質的にイミダゾールフリーの摩擦改質反応生成物とからなり、前記摩擦改質反応生成物は約1.20～約2.50℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と2個～約1.5個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余

分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする润滑油における摩擦改質の改良方法。

17. 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の成分-2酸との反応から誘導されるアミン塩組成物において：

(A) 成分-1は

(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2個～約1.5個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと。

(ii) 約1.0～約3.0個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は(a)反応体A-1アミンの少なくとも1個のアミン基を反応体A-1-1酸の酸基と反応させてアミドを生成させると共に、(b)得られる成分-1反応生成物に少なくとも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充分な方式及び条件にて行ない。

(B) 成分-2は

(i) 構造式：

の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約1.0～3.0個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

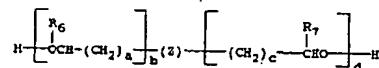
を反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪族モノ酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、分枝鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸及びその混合物よりなる群から選択されることを特徴とする添加剤濃厚物。

16. 動力伝達液として使用するのに適した润滑油の摩擦改質を向上させるに際し前記潤滑油と摩擦改質量の添加剤組成物とを混合することからなり、前記添加剤組成物は

(a) 润滑油と。

(b) 実質的にイミダゾールフリーのアミド含有反応生成物の摩擦改質量とからなり、前記反応生成物は約1.20～約2.50℃の温度にて(1)全部で約2～約60個の炭素原子と2個～約1.5個の窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、(2)約1.0～3.0個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて生成され、前記反応はアミノ反応体1モル当り約2～約10モル当量の脂肪族モノ酸を用いて行なわれ、さらに前記脂肪族モノ酸は直鎖の飽和若しくは不飽和脂肪酸、

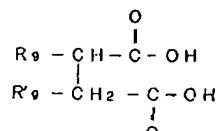


(XXIII)

[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>8</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～C<sub>4</sub>アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c)及び(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数値を示し；Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR<sub>6</sub>から選択される結合基を示し、ここでR<sub>6</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>4</sub>モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる]

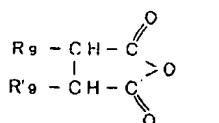
により示されるアルコールと。

(ii) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造式：



(XXIV)

及び



(XXV)

[式中、R'は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub>脂肪族ヒドロカルビルであり、R<sub>6</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される最もしくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)  
反応体B-iの少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体B-  
iiの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステル  
を生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物  
に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充  
分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とするアミン塩組成物。

18. (1) 润滑油と、

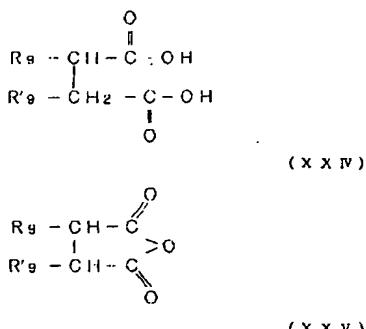
(2) 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも  
1種の成分-2酸との反応により生成される摩擦改質量のア  
ミン塩組成物と

からなり、

(A) 成分-1は

(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2  
個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なく  
とも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原  
子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在  
するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モ



[式中、R<sub>6</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である]

により示される最もしくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は(a)  
反応体B-iの少なくとも1個のヒドロキシル基を反応体B-  
iiの少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステル  
を生成させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物  
に少なくとも1個の反応性カルボキシル基を付与するのに充  
分な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑油組成物。

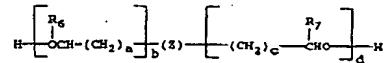
19. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約2  
5～約100重量%の請求の範囲第18項記載の塩組成物と

ノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、  
前記反応は(a)反応体A-iアミンの少なくとも1個のア  
ミン基を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成  
させると共に、(b)得られる成分-2反応生成物に少なく  
とも1個の反応性第一若しくは第二アミン基を付与するのに充  
分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2は

(i) 構造式：



(XXIII)

[式中、R<sub>6</sub>及びR<sub>7</sub>はそれぞれ独立して水素又はC<sub>1</sub>～  
C<sub>6</sub>アルキルを示すことができる、(a)、(b)、(c)及び  
(d)はそれぞれ独立して1～約3の範囲で変化しうる数  
値を示し、Zは-S-、-S-S-、-O-及び>NR<sub>6</sub>から選択される結合基を示し、ここでR<sub>6</sub>は水素、C<sub>1</sub>～約  
C<sub>6</sub>アルキル若しくはC<sub>1</sub>～約C<sub>6</sub>モノヒドロキシ置換アル  
キルを示すことができる】

により示されるアルコールと、

(11) アルコール1モル当り約1～約2モルの各構造  
式：

からなることを特徴とする添加剤濃厚物。

20. 摩擦改質量の請求の範囲第18項記載の塩組成物を摩  
擦改質剤として用いることを特徴とする動力伝達液として使  
用するのに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

21. 少なくとも1種の成分-1アミンと少なくとも1種の  
成分-2酸とからなる混合物の摩擦改質量を含む組成物にお  
いて：

(A) 成分-1は

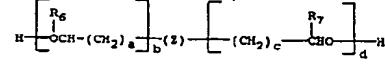
(i) 全部で約2～約60個の炭素原子と少なくとも2  
個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なく  
とも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原  
子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在  
するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ  
酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、  
前記反応は反応体A-iアミンの少なくとも1個のアミン基  
を反応体A-ii酸の酸基と反応させてアミドを生成させるの  
に充分な方式及び条件にて行ない、

(B) 成分-2は

(i) 構造式：

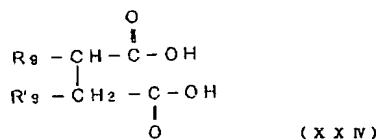


(XXIII)

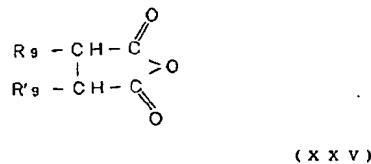
[式中、R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> はそれぞれ独立して水素又は C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub> アルキルを示すことができる。 (a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1～約 3 の範囲で変化しうる数値を示し；Z は -S-、-S-S-、-O- 及び >NR。から選択される結合基を示し、ここで R<sub>3</sub> は水素、C<sub>1</sub>～約 C<sub>6</sub> アルキル若しくは C<sub>1</sub>～約 C<sub>6</sub> モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる】

により示されるアルコールと、

(11) アルコール 1 モル当たり約 1 ~ 約 2 モルの各構造式：



及 5

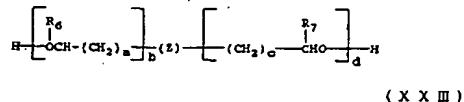


〔式中、R' は水素、C<sub>1</sub>～C<sub>4</sub> 脂肪族ヒドロカルビルであり、R<sub>1</sub> は約 12～約 50 個の炭素原子を有する脂肪族ヒ

を反応体 A-1 と I 酸の酸基と反応させてアミドを生成させる  
のに充分な方式及び条件にて行ない、

( B ) 成分 - 2 仕

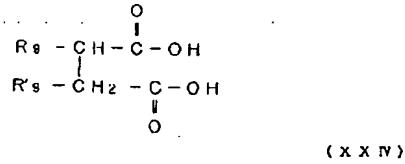
( i ) 構造式 :



〔式中、R<sub>1</sub> 及び R<sub>2</sub> はそれぞれ独立して水素又は C<sub>1</sub>～C<sub>6</sub> アルキルを示すことができ、(a)、(b)、(c) 及び (d) はそれぞれ独立して 1～約 3 の範囲で変化しうる数値を示し；Z は -S-、-S-S-、-O- 及び >NR。から選択される結合基を示し、ここで R<sub>3</sub> は水素、C<sub>1</sub>～約 C<sub>6</sub> アルキル若しくは C<sub>1</sub>～約 C<sub>6</sub> モノヒドロキシ置換アルキルを示すことができる】

により示されるアルコールと、

(ii) アルコール 1 モル当たり約 1 ～ 約 2 モルの各構造式：



ドロカルビル基である

により示される酸若しくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は (a)  
反応体 B-1 の少なくとも 1 個のヒドロキシ基を反応体 B-  
1i の少なくとも 1 個のカルボキシル基と反応させてエステル  
を生成させると共に、(b) 得られる成分-2 反応生成物に  
少なくとも 1 個の反応性カルボキシル基を付与するのに充分  
な方式及び条件にて行なわれる

ことを特徴とする組成物。

(1) 潤滑油と、  
(2) 少なくとも 1 種の成分 - 1 アミンと少なくとも 1 種の成分 - 2 酸とからなる摩擦改質量の混合物とある。

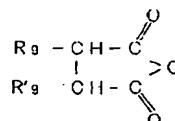
(a)  $\theta = 17^\circ$

(1) 全部で約2～約80個の炭素原子と少なくとも2個～約15個までの窒素原子とを有し前記窒素原子の少なくとも1個が第一アミン基として存在すると共に残余の窒素原子の少なくとも1個が第一若しくは第二アミン基として存在するアミンと、

(ii) 約10～約30個の炭素原子を有する脂肪族モノ酸と

を反応させて得られる少なくとも1種の反応生成物であり、前記反応は反応体A-1アミンの少なくとも1個のアミン基

及 U



( X X V )

〔式中、R<sub>n</sub>は約12～約50個の炭素原子を有する脂肪族ヒドロカルビル基である〕

により示される酸若しくは酸無水物と  
を反応させて得られる反応生成物であり、前記反応は反応体  
B-1の少なくとも1個のヒドロキシ基を反応体B-1の  
少なくとも1個のカルボキシル基と反応させてエステルを生  
成させるのに充分な方式及び条件にて行なわれる  
ことを特徴とする動力伝達液として使用するのに適した潤滑  
油組成物。

23. 約75重量%までの量の潤滑油と、濃厚物に対し約25～約100重量%の請求の範囲第22項記載の混合物からなる添加剤濃厚物。

24. 摩擦改質剤として請求の範囲第22項記載の混合物の摩擦改質量を用いることを特徴とする動力伝達液として使用するに適した潤滑油の摩擦改質の改良方法。

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**